

INAUGURAL - DISSERTATION

zur

Erlangung der Doktorwürde

der

Naturwissenschaftlich - Mathematischen

Gesamtfakultät

der Ruprecht-Karls-Universität

Heidelberg

Vorgelegt von

Dipl.-Phys. Lisa Schmöger

aus Malsch

Tag der mündlichen Prüfung: 28.06.2017





# Kalte hochgeladene Ionen für Frequenzmetrologie

Gutachter:

PD Dr. José Ramon Crespo López-Urrutia  
Prof. Dr. Andreas Wolf



## Cold highly charged ions for frequency metrology

Simultaneous control over both excitational and motional degrees of freedom of quantum objects facilitates measurement accuracies at a level that enables the measurement of subtle relativistic effects, tests of the Standard Model and even the search for expected effects of physics beyond it. Theoretical calculations predict enhanced sensitivities of forbidden optical transitions in highly charged ions (HCIs) to possible variations of fundamental constants, such as the fine structure constant. Within this thesis, a versatile preparation technique of cold and strongly localized HCIs has been developed and demonstrated, adding a multitude of laser accessible systems to the quantum toolbox, that have enhanced sensitivity to fundamental physics. HCIs are extracted from an electron beam ion trap (EBIT), where they are produced in the MK temperature range. Subsequently they are cooled down to the mK regime, needed for high precision laser spectroscopy, in a cryogenic linear Paul trap. Deceleration, precooling and multi-pass stopping approaches enable HCI implantation within a prestored, continuously laser-cooled  $\text{Be}^+$ -Coulomb crystal. Here the HCIs are co-crystallized in mixed-species ensembles (specifically  $\text{Ar}^{13+}$  highly charged and  $\text{Be}^+$  coolant ions) - ranging from large 3-dimensional crystals over ion strings down to a single  $\text{Ar}^{13+}$  ion cooled by a single  $\text{Be}^+$  ion. The precooling, retrapping and sympathetic stopping process, as well as various Coulomb crystal configurations are characterized and compared to simulations and theoretical models. The developed experimental concept and its modular implementation enable, for the first time, the localization of HCIs in a microscopic region of a Paul trap, today's standard method for singly-charged ion frequency metrology. This is a necessary prerequisite for the development of novel ultra-precise optical clocks based on quantum logic spectroscopy on forbidden transitions in HCIs and subsequent low-energy searches for physics beyond the Standard Model.

## Kalte hochgeladene Ionen für Frequenzmetrologie

Die gleichzeitige Kontrolle über die Freiheitsgrade der Bewegung und Anregung von Quantenobjekten erlaubt Genauigkeiten mit denen die Messung geringster relativistischer Effekte, Tests des Standardmodells und die Suche nach Physik jenseits des Standardmodells möglich sind. Bei hochgeladenen Ionen (HCIs) sagen theoretische Berechnungen u.a. eine erhöhte Sensitivität verbotener optischer Übergänge bzgl. der Variation fundamentaler Konstanten, insbesondere der Feinstrukturkonstanten, voraus. In der vorliegenden Arbeit wurde eine vielseitige Technik zur Präparation kalter, stark lokalisierter HCIs entwickelt und demonstriert. Dies fügt HCIs dem Repertoire an Quantensystemen für entsprechende Präzisionsexperimente hinzu. In einer Elektronenstrahlionenfalle (EBIT) werden HCIs im MK Temperaturbereich erzeugt und nach Injektion in eine Paulfalle in das mK Temperaturregime abgekühlt. Die Verfahrensweise des Abbremsens, Vorkühlens und anschließenden Multipass-Stoppens ermöglicht die HCI-Implantation in einen vorgespeicherten, kontinuierlich laser-gekühlten  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall. In diesem ko-kristallisieren die HCIs und ein Mischkristall formt sich (hier:  $\text{Ar}^{13+}$  und  $\text{Be}^+$ ), dessen Konfigurationen das Spektrum von großen dreidimensionalen Mischkristallen, über Ionenketten, bis hin zu einem Zwei-Ionen-Kristall abdeckt. Sowohl der Retrapping-, sympathetische Stopp- und Kühlprozess, als auch die erzeugten Mischkristalle werden charakterisiert und mit Simulationen und theoretischen Modellen verglichen. Erstmals realisiert das entwickelte experimentelle Konzept, zusammen mit seiner modularen Implementation, die mikroskopische Lokalisierung von HCIs in einer Paulfalle, dem heutigen Arbeitspferd hochpräziser Frequenzmetrologie einfach-geladener Ionen. Dies erfüllt die notwendigen Voraussetzungen für die Entwicklung neuer optischer Uhren mit verbotenen Übergängen in HCIs als Taktgeber und ebnet damit den Weg für die Suche nach Physik jenseits des Standardmodells mit nieder-energetischen atomphysikalischen Methoden.



---

# Inhaltsverzeichnis

---

<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>1 Langzeitspeicherung lasergekühlter Coulomb-Kristalle</b>	<b>11</b>
1.1 Theorie der Ionenspeicherung in einer linearen Paulfalle . . . . .	12
1.1.1 Radialer Einschluss . . . . .	13
1.1.2 Axialer Einschluss . . . . .	16
1.1.3 Stabilitätsdiagramm und ponderomotorisches Pseudopotential	18
1.2 Laserkühlung gespeicherter Ionen . . . . .	24
1.2.1 Dopplerkühlen . . . . .	25
1.2.2 Seitenbandkühlen . . . . .	34
1.3 Eine kryogene Paulfalle der ersten Generation . . . . .	37
1.4 Sympathetisches Kühlen . . . . .	45
1.5 Präparation von ${}^9\text{Be}^+$ Coulomb-Kristallen . . . . .	49
1.5.1 Erzeugung eines neutralen, kollimierten ${}^9\text{Be}$ -Atomstrahls . . .	51
1.5.2 Resonanzverstärkte Zwei-Photonen-Ionisation von Be-Atomen	64
1.5.3 Laserkühlen von $\text{Be}^+$ -Ionen . . . . .	73
<b>2 Präparation kalter hochgeladener Ionen</b>	<b>93</b>
2.1 Theoretische Vorüberlegungen . . . . .	96
2.1.1 Extraktion von HCIs aus einer EBIT . . . . .	96
2.1.2 Bremsvermögen von $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristallen . . . . .	97
2.2 Produktion und Extraktion hochgeladener Ionen . . . . .	103
2.3 Abbremsen extrahierter Ionenpakete und Vorkühlen . . . . .	108
2.3.1 Beamline Komponenten . . . . .	108
2.3.2 Pulsed Buncher Tube - Funktionsweise . . . . .	111
2.3.3 Pulsed Buncher Tube - Theoretisches Modell . . . . .	113
2.3.4 Pulsed Buncher Tube - Design . . . . .	123
2.3.5 Abbrems- und Vorkühlmessungen . . . . .	124
2.4 Retrapping von HCIs in einer linearen Paulfalle . . . . .	130
2.4.1 Retrapping-Konzept . . . . .	130
2.4.2 $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen Retrapping-Nachweis . . . . .	132
2.4.3 Energie-Akzeptanz der linearen Paulfalle . . . . .	134
2.4.4 Retrapping-Effizienz . . . . .	135

2.4.5	SIMION-Simulationen des Retrapping-Prozesses . . . . .	136
2.5	Zusammenfassung, typ. Energien und Effizienzen . . . . .	141
2.6	Dreidimensionale HCI/Kühlion-Mischkristalle . . . . .	144
2.6.1	Konstanz der Ladungsdichte . . . . .	144
2.6.2	Ionenkonfiguration als Minimierung der Gesamtenergie . . . .	147
2.6.3	Zentrierung von Mischkristallen im RF-Feld . . . . .	149
2.6.4	Abschirmung elektrostatischer Felder durch den Be <sup>+</sup> -Kristall .	151
2.7	HCI/Be <sup>+</sup> -Ionenketten . . . . .	155
2.7.1	Übergang zu Ionenketten und HCI-Nachweis . . . . .	155
2.7.2	Theoretische Ionenpositionen . . . . .	157
2.7.3	Ladungszustands-Bestimmung mittels Ionenketten . . . . .	160
2.7.4	Zwei-Ionen-Mischkristalle . . . . .	163
2.7.5	Eigenfrequenzen gemischter Ionenketten . . . . .	165
2.8	HCI-Lebensdauer und Vakuumdruckabschätzung . . . . .	170
2.8.1	Ladungsaustausch als HCI-Verlustmechanismus . . . . .	170
2.8.2	Langevin-Ratenkoeffizient . . . . .	173
2.8.3	Grenzen der Gültigkeit des Langevin-Modells . . . . .	178
2.8.4	Vakuumdruckabschätzung . . . . .	179
2.9	Temperaturbestimmung für Mischkristalle . . . . .	181
2.9.1	T-Bestimmung über Plasma-Kopplungs-Parameter . . . . .	181
2.9.2	T-Bestimmung durch Molekulardynamik-Simulationen . . . .	184
2.9.3	T-Bestimmung über Positions-Thermometrie . . . . .	188
<b>Ausblick</b>		<b>197</b>
<b>A</b>	<b>Anhang</b>	<b>201</b>
A.1	Theoretisches Modell des Vorkühlprozesses . . . . .	201
<b>Publikationsliste</b>		<b>207</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>		<b>211</b>

---

# Einleitung

---

*„If I have seen further,  
it is by standing on the shoulders of giants.“*  
Isaac Newton

Hochgeladene Ionen (HCIs), d.h. Atome denen wesentlich mehr als ein Elektron der Hülle entrissen wurde, so dass die Ladung des Kerns nur noch teilweise kompensiert wird, sind hoch-relativistische Systeme und stellen einen Großteil der beobachtbaren, baryonischen Materie des Universums dar. Die Untersuchung hochgeladener Ionen war daher innerhalb der vergangenen Jahrzehnte vor allem von Bedeutung für QED-Tests [1–4], sowie für diagnostische Zwecke im Rahmen der Plasmaphysik [5], die Erklärung astrophysikalischer Beobachtungen und die Modellierung astrophysikalischer Vorgänge [6–8]. Seit zwei bahnbrechenden theoretischen Veröffentlichungen [9, 10] von Berengut und Koautoren in den Jahren 2010/11 wird als weitere Anwendung von HCIs die Realisierung neuer hoch-präziser optischer Uhren mit Übergängen in HCIs als Taktgebern entwickelt. Diese könnten für Tests im Bereich der fundamentalen Physik eingesetzt werden. In den beiden Veröffentlichungen [9, 10] wurde gezeigt, dass trotz extrem hoher Bindungsenergien (bis zu Größenordnungen von 100 keV) bestimmte HCIs schmalbandige Übergänge im optischen Bereich aufweisen, die zusätzlich, aufgrund der starken relativistischen Effekte, eine erhöhte Empfindlichkeit für eine mögliche Variation der Feinstrukturkonstanten  $\alpha = e^2/(\hbar c) \approx 1/137$  besitzen. Weitere theoretische Studien folgten, die mehr als 10 HCIs für den Bau hoch-präziser optischer Uhren und die Suche nach einer möglichen Variation von Naturkonstanten vorschlagen [11–17]. Die hohe vorhergesagte Präzision, mit relativen Frequenzunsicherheiten  $< 10^{-19}$ , gründet sich in der starken Bindung des Valenzelektrons an den Kern bei hoch geladenen Ionen. Die resultierende geringe Polarisierbarkeit der Elektronenhülle führt zu niedrigen systematischen Verschiebungen der Übergangsfrequenz durch äußere elektrische Felder (DC, AC-Stark-Verschiebung), sowie zu einer weitgehenden Immunität gegenüber Schwarzkörperstrahlung (die für einfach geladene Moleküle und Atome teils limitierende Bedeutung hat). Die meisten der, für diese Art der Anwendung vorgeschlagenen, HCIs, wie  $\text{Ir}^{17+}$  und  $\text{Ho}^{14+}$  besitzen Ladungszustände zwischen 9+ und 18+, da sich bei höheren Ladungszuständen die Übergänge in den XUV-Wellenlängenbereich verschieben und in den angegebenen Referenzen nach Übergängen im (nahe-)optischen

Bereich, für den extrem schmalbandige Uhren-Laser existieren, gesucht wurde. Die Suche nach Physik jenseits des Standardmodells kann traditionell sowohl im Bereich der Hochenergiephysik durchgeführt werden, in dem es um die Entdeckung neuer oder Bestätigung der Existenz vorhergesagter Teilchen geht. Zum anderem finden seit längerer Zeit Tests des Standardmodells im niederenergetischen Bereich der Atomphysik, mit Hilfe von Präzisionsexperimenten, statt. Solche Suchen nach Physik jenseits des Standardmodells können in Tests der Quantenelektrodynamik bestehen [2, 3], in einer Suche nach Verletzung der lokalen Lorentzinvarianz [18, 19] oder einem Nachgehen der Fragestellung, ob die fundamentalen Konstanten tatsächlich in Raum und Zeit konstant sind [20–24]. Gerade die letzte Fragestellung ist in einer physikalischen Welt, die auf der Reproduzierbarkeit und Vergleichbarkeit von Messungen beruht, von entscheidender Bedeutung.

Eine Kollaboration zwischen der Physikalisch-Technischen-Bundesanstalt (schmalbandige Laser, Quantenlogik-Spektroskopie [25], Paulfallen) und dem Max-Planck-Institut für Kernphysik (Produktion von und Umgang mit HCIs [26], kryogene Apparaturen), in deren Rahmen die Ergebnisse dieser Arbeit erzielt wurden, hat sich zur langfristigen Aufgabe gemacht, eine optische Uhr, basierend auf Übergängen in HCIs zu entwickeln und anschließend nach einer möglichen Variation der Feinstrukturkonstanten (und des Elektronen-zu-Protonen-Masseverhältnisses  $\mu$ ) zu suchen [27]. Bei den beiden genannten Konstanten handelt es sich um wahrhaft fundamentale Konstanten, da beide dimensionslos sind. Damit entfällt die mögliche Ununterscheidbarkeit zwischen Variation von Einheit und Wert einer physikalischen Größe.

Eine Untersuchung der Feinstrukturkonstanten, die die Stärke der elektromagnetischen Wechselwirkung angibt, ist auch aufgrund umstrittener astrophysikalischer Untersuchungen von Quasar-Absorptionsspektren durch Webb und Mitarbeiter von Relevanz. In [28] wurde als Ergebnis dieser Beobachtung geschlussfolgert, es gäbe eine räumliche Variation der Werte von  $\alpha$  über kosmologische Abstände (so genannter Australien Dipole), mit einer aufgeprägten Dipol-Struktur. Da sich die Erde im Universum und damit im räumlichen  $\alpha$ -Dipol bewegt, würde die räumliche Variation von  $\alpha$  einer auf der Erde zeitlichen Variation der Feinstrukturkonstanten von  $\dot{\alpha}/\alpha|_{lab} \approx 10^{-19} yr^{-1}$  entsprechen [29]. Die astrophysikalischen Untersuchungen sind insofern umstritten, als dass der beobachtete Dipol auch durch systematische Kalibrations-Effekte erzeugt bzw. verstärkt werden könnte, wie neuere Untersuchungen der verwendeten Spektrometer gezeigt haben [30]. Ein Laborexperiment auf der Erde mit erhöhter Präzision wäre also auch in dieser Hinsicht wünschenswert.

Wenn sich der Wert der Feinstrukturkonstante ändert, so ändern sich atomare Übergangsfrequenzen. Je nach Atomstruktur würden manche Frequenzen bei einem Anstieg von  $\alpha$  größer werden, andere kleiner und wieder andere würden sich gar nicht oder kaum ändern. Das betrachtete Beispiel der astrophysikalischen Untersuchung zeigt, dass die zu erwartenden relativen Änderungen von  $\alpha$  extreme klein wären, so dass man Frequenzmessungen zum Ausnutzen der höchsten Messpräzision im Bereich der Physik anwendet, um auf diese möglichen Variationen zu testen. So wurden bereits in der Vergangenheit die Übergänge präziser optischer Uhren, basierend auf



---

neutralen oder einfach geladenen Ionen, miteinander verglichen, um eine Aussage über mögliche Variation von  $\alpha$  (oder  $\mu$ ) treffen zu können. Notwendigerweise müssen hier Verhältnisse von Übergangsfrequenzen, mit unterschiedlicher Sensitivität auf  $\alpha$ -Variation, bestimmt werden. Sonst kann zum einen der Vorteil der Dimensionslosigkeit von  $\alpha$  nicht erhalten bleiben, zum anderen kann keine Trennung von anderen frequenz-verschiebenden Effekten stattfinden.

Fast ein Jahrzehnt lang kam die genaueste Bestimmung von  $\dot{\alpha}$  von einem Uhrenvergleich der NIST  $\text{Hg}^+$ - mit der dortigen  $\text{Al}^+$ -Atomuhr. Hierbei ist der Uhrenübergang in  $\text{Hg}^+$  sensitiv auf  $\dot{\alpha}$ , während der Übergang in  $\text{Al}^+$  praktisch gar nicht sensitiv auf Drifts von  $\alpha$  ist. Der wiederholte Vergleich beider Uhrenübergänge für die Dauer eines Jahres lieferte als Ergebnis  $\dot{\alpha}/\alpha = -1.7(2.5) \times 10^{-17} \text{yr}^{-1}$  [31], wobei der angegebene Fehler größer als der eigentliche Messwert ist. Anfang 2016 lieferte der Vergleich des E3-Übergangs der hoch-präzisen PTB  $\text{Yb}^+$ -Atomuhr [32,33] mit der PTB Sr-Gitteruhr [34] einen, bezüglich der Messunsicherheit verbesserten, Wert von  $\dot{\alpha}/\alpha = -6.5(4.7) \times 10^{-18} \text{yr}^{-1}$  für die Variation von  $\alpha$ . Dabei sollte betont werden, dass der Oktupol-Übergang in  $\text{Yb}^+$ , innerhalb der bisher erprobten einfach geladenen Uhrenionen, die höchste Sensitivität auf  $\dot{\alpha}/\alpha$  aller einfach geladenen Systeme besitzt. Zum einen wäre es wünschenswert das PTB-Ergebnis mit einer anderen Ionensorte zu überprüfen. Zum anderen wäre entweder eine Erhöhung bzgl. der Empfindlichkeit auf  $\dot{\alpha}/\alpha$  oder eine Verkleinerung des systematischen Fehlerbudgets notwendig, um eine Aussage bzgl. kleinster Drifts der Feinstrukturkonstanten machen zu können. Ein Verstärkungsfaktor von zwei Größenordnungen wäre z.B. für Tests der astrophysikalischen Messungen notwendig.

Optische Uhren, basierend auf einfach geladenen Ionen, kommen aufgrund kleiner Veränderungen ihrer Übergangsfrequenzen, durch Störungen aufgrund äußerer Umwelteinflüsse, bzgl. ihrer relativen Frequenzunsicherheit insofern an eine Grenze, als dass das Uhren-Ion ab einem Niveau von  $< 10^{-19}$  relativer Unsicherheit im Prinzip ein Quantensensor für seine gesamte Umgebung wird [35]. So spielen auf diesem Level schon Höhenunterschiede der Uhren von 1 cm eine nennenswerte Rolle [36]. Zwei verschiedene Klassen von Systemen könnten hier neue Möglichkeiten bieten. Dies wäre zum einen die Realisierung einer Uhr basierend auf einem  $^{229\text{m}}\text{Th}$ -Kernübergang [37], zum anderen bietet sich die große Klasse der HCIs als laserspektroskopische Systeme an.

Während sich die, zur Hauptquantenzahl  $n$  gehörende, Bindungsenergie  $E_n$  des Elektrons in einem wasserstoffartigen System zwar in SI-Einheiten nach  $E_n = -\frac{1}{2n^2} \left( \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{\mu_{red}}{\hbar^2} = -\frac{1}{2} \mu_{red} c^2 \frac{(Z\alpha)^2}{n^2}$  durch die Feinstrukturkonstante ausdrücken lässt, so hängt diese nicht wirklich essentiell von  $\alpha$  ab. Dies wird deutlich beim, für die folgenden Überlegungen beibehaltenen, Übergang zu atomaren Einheiten:  $E_n = -Z^2/(2n^2)$ . Im Gegensatz dazu skalieren die relativistischen Korrekturen zur Zentralfeld-Schrödinger-Gleichung für ein Valenzelektron, abgeleitet im Rahmen der Pauli-Theorie, mit  $\alpha^2$ . Für ein einzelnes Valenzelektron oberhalb ansonsten geschlossener Schalen, kann die relativistische Energieverschiebung näherungsweise durch

folgende Gleichung beschrieben werden [29]:

$$\Delta_n \approx -I_n \frac{(Z\alpha^2)^2}{\nu(j+1/2)} =: q_n. \quad (1)$$

Dabei steht  $Z$  für die Kernladungszahl und

$$I_n = -E_n = \frac{Z_a^2}{2n^2} \propto (Z_{ion} + 1)^2 \quad (2)$$

für die (positive) Ionisationsenergie eines Elektrons des betrachteten Zustandes. Hierbei wurde die effektive Ladung  $Z_a$ , die über  $Z_a/n = (Z_{ion} + 1)/\nu$  definiert ist und die Abschirmung der Kernladung durch die übrigen Elektronen ausdrückt, eingeführt.  $Z_{ion}$  beschreibt den Ladungszustand des Ions,  $\nu$  steht für die nicht-ganzzahlige effektive Hauptquantenzahl, während  $j$  die Drehimpuls-Quantenzahl des betrachteten Zustandes ist.

Die Abhängigkeit der Übergangsfrequenz  $\omega$  von kleinen Änderungen in  $\alpha$  wird durch den sogenannten  $q$ -Parameter nach  $\omega = \omega_0 + qx$  charakterisiert. Hierbei steht  $\omega_0$  für die Übergangsfrequenz beim aktuellen Wert der Feinstrukturkonstanten  $\alpha_0$ , während  $x$  für die relative Änderung der Übergangsfrequenz in Abhängigkeit von  $\alpha^2$  steht:

$$\omega = \omega_0 + qx, \quad x = \left( \frac{\alpha}{\alpha_0} \right)^2 - 1 \approx 2 \frac{\Delta\alpha}{\alpha}, \quad q = q_f - q_i. \quad (3)$$

Die Definition von  $q$  verdeutlicht die Tatsache, dass die relativistische Verschiebung mit  $\alpha^2$  skaliert. Des Weiteren setzt sich  $q$  nach  $q = q_f - q_i$  aus den relativistischen Korrekturen der beteiligten Energieniveaus zusammen ( $i$  - unterer Zustand,  $f$  - oberer Zustand). Wie man an Gleichung (1) sieht kann die Empfindlichkeit auf  $\dot{\alpha}$  durch in Betracht ziehen von Übergängen in HCIs, aufgrund ihrer hohen Ionisationsenergie, maximiert werden. Dieser Effekt verstärkt sich noch für schwere Elemente mit höherer Kernladungszahl. Zusätzlich erlaubt die Betrachtung von Übergängen mit maximaler Differenz der Zustandskonfigurationen  $\Delta j, \Delta \nu$  ein weiter erhöhtes  $q$ . Die Betrachtung von Loch-Übergängen kann, aufgrund von  $q \propto I_n^{3/2}$ , zu einer zusätzlichen Verstärkung der Sensitivität eines solchen Übergangs auf  $\alpha$ -Variation führen [10].

Die theoretisch vorhergesagten Werte des Sensitivitäts-Koeffizienten  $q = d\omega/dx$ , für einen bestimmten atomaren Übergang, werden durch Variation des Wertes von  $\alpha$  in Computer-Codes zur Berechnung der Atomstruktur, bestimmt. Wird z.B.  $\alpha$  um 6 % variiert, so wird die Übergangsfrequenz einmal mit  $\alpha_1 = \sqrt{9/8}\alpha_0$  und einmal mit  $\alpha_2 = \sqrt{7/8}\alpha_0$  berechnet, so dass anschließend der  $\dot{\alpha}$ -Sensitivitäts-Koeffizient nach  $q = \omega(0.125) - \omega(-0.125)/0.25$  bestimmt werden kann.

Da Tests einer möglichen Variation von  $\alpha$ , auf Grundlage eines Uhren-Vergleichs, im Messen eines Frequenzverhältnisses  $r = \omega_1/\omega_2$  bestehen, ist die aussagekräftigere Größe zur Beschreibung der Empfindlichkeit eines solchen Vergleichs auf Drifts in  $\alpha$  der so genannte Verstärkungsfaktor  $K = 2q/\omega$  eines atomaren Übergangs. Dies erkennt man sofort, wenn man sich die Beziehung

$$\frac{\dot{r}}{r} = (K_1 - K_2) \frac{\dot{\alpha}}{\alpha}, \quad K = \frac{2q}{\omega} \quad (4)$$

---

Atom	Verstärkungsfaktor $K$
$\text{Al}^+, \text{Ca}^+, \text{Sr}, \text{Yb}^+(\text{E2}), \text{Yb}$	$0.008 - 1.0$
$\text{Hg}^+ (\text{E2})$	$-2.9 \quad (282 \text{ nm})$
$\text{Yb}^+ (\text{E3})$	$-6.0 \quad (467 \text{ nm})$
$^{193}\text{Ir}^{17+} (\text{T1})$	$+32 \quad (\approx 470 \text{ nm})$
$^{193}\text{Ir}^{17+} (\text{T2})$	$-21 \quad (\approx 267 \text{ nm})$
$^{249}\text{Cf}^{15+} (\text{E2})$	$+57 \quad (\approx 812 \text{ nm})$
$^{253}\text{Es}^{16+} (\text{E2})$	$-53 \quad (\approx 1430 \text{ nm})$
$^{249}\text{Cf}^{16+} (\text{M1})$	$-46 \quad (\approx 653 \text{ nm})$
$^{249}\text{Cf}^{16+} (\text{E2})$	$+75 \quad (\approx 520 \text{ nm})$

---

**Tabelle 1:** Zusammenfassung der Verstärkungsfaktoren  $K$  für die Sensitivität eines erprobten (neutral, einfach geladen) oder vorgeschlagenen (HCIs) Uhren-Übergangs für Drifts der Feinstrukturkonstanten. Es wird eine Auswahl aus [9–17, 27], teilweise mit Angabe der Wellenlänge für den entsprechenden Übergang, gezeigt.

zur Bestimmung von  $\dot{\alpha}/\alpha$ , mittels des experimentell messbaren Frequenzverhältnisses der Uhren-Übergänge, anschaut. In Tabelle 1 werden einige, theoretisch berechnete, Verstärkungsfaktoren  $K$  von hochgeladenen Ionen, mit denen einfach geladener oder neutraler Uhren-Atome, verglichen. Der elektrische Oktupol-Übergang in  $\text{Yb}^+$  besitzt unter den neutralen und einfach geladenen Atomen den größten Verstärkungsfaktor. Im  $\text{Ir}^{17+}$ - und  $\text{Cf}^{16+}$ -Ion gibt es je zwei Übergänge mit hohen Verstärkungsfaktoren mit entgegengesetztem Vorzeichen. Damit könnten zwei optische Uhren mit einem einzelnen Uhren-Ion realisiert werden, indem beide Übergänge in kurzer zeitlicher Abfolge abgefragt würden. In diesem Fall würden sich bestimmte systematische Verschiebungen der Übergangsfrequenzen, wie z.B. Doppler-Verschiebungen zweiter Ordnung oder Gravitations-Rotverschiebungen, aufheben, was zu einem zusätzlich verminderten Fehler-Budget führen würde. Ein Vergleich zwischen zwei Uhren, basierend auf, den in Tabelle 1 gezeigten, elektrischen Quadrupol-Übergängen in den Aktinid-Ionen  $^{249}\text{Cf}^{15+}$  und  $^{253}\text{Es}^{16+}$ , könnte einen Verstärkungsfaktor  $\Delta K$  größer als 100 bzgl. der Empfindlichkeit des Uhren-Vergleichs auf  $\alpha$ -Variation, liefern. Würde sich der Wert von  $\alpha$  in Raum oder Zeit ändern, dann würde sich das Frequenzverhältnis der beiden Aktinid-Uhren-Übergänge 100-mal schneller ändern. Umgekehrt könnte, bei Wahl dieses Uhren-Paares, eine relative Unsicherheit von  $10^{-18}$ , die bereits heute mit Uhren, basierend auf einfach geladenen Ionen, erreicht werden kann [33], bereits ausreichen, um eine mögliche  $\alpha$ -Variation in der Größenordnung des Australian Dipoles nachzuweisen.

Um die volle Verstärkung der Übergangsfrequenz bzgl.  $\dot{\alpha}/\alpha$  nutzen zu können, muss der betrachtete Übergang auch als Uhren-Übergang geeignet sein. Dies bedeutet, es sollte ein optischer Übergang zwischen einem Grundzustand und einem langlebigen metastabilen Zustand, in Kombination mit einem niedrigen systematischen Fehlerbudget, sein. Ansonsten kann die volle Verstärkung nicht komplett realisiert

werden, wie es der Fall im Dysprosium-Uhren-Experiment war [38, 39]. Die Größe der HCIs skaliert mit  $1/(Z_{ion} + 1)$ , wodurch ihre Dipol-, Quadrupolmomente und Polarisierbarkeiten um mehrere Größenordnungen unterdrückt sind. Die Polarisierbarkeit ist z.B. in HCIs um den Faktor  $1/(Z_{ion})^4$  unterdrückt.

Für Frequenzmetrologie und Tests von  $\alpha$  gleichermaßen interessante, optische Übergänge in HCIs treten durch Niveau-Kreuzungen, wenn die Ionen einer isoelektronischen Sequenz ihre Grundzustandskonfiguration ändern, auf. Damit ist Folgendes gemeint: Die Reihenfolge der Schalenstruktur neutraler Atome nach dem Periodensystem ist verschieden von der Reihenfolge in wasserstoffartigen Ionen. Z.B. kommt in wasserstoffartigen Ionen die  $4f$ -Schale direkt nach der  $4s$ ,  $4p$  und  $4d$ -Schale, während bei der Madelung-Reihenfolge des Periodensystems die  $4f$ -erst nach der  $6s$ -Schale aufgefüllt wird. Damit verringert sich die Energie des  $4f$ -Zustandes deutlich schneller entlang einer isoelektronischen Sequenz als die Energien anderer Niveaus, so dass es in der Umgebung einer bestimmten Kernladungszahl  $Z$  zu einer Neuordnung der Elektronenkonfiguration kommen sollte. Für Niveau-Kreuzungen, die den Grundzustand eines Ions betreffen, können niederenergetische Übergangsfrequenzen im optischen Bereich auftreten. Sind diese Übergänge vom Typ  $p-f$  oder  $s-f$ , so handelt es sich um schmalbandige, E1-verbotene Übergänge, die damit für hoch-präzise Frequenzmetrologie geeignet sind. Der zugehörige hohe Qualitätsfaktor des Übergangs kann, zusammen mit dem niedrigen zu erwartenden Fehlerbudget, die Realisierung optischer Uhren mit vorhergesagten, relativen Unsicherheiten kleiner  $< 10^{-19}$ , ermöglichen.

An dieser Stelle sei noch darauf hingewiesen, dass verbotene Übergänge hochgeladener Ionen nicht nur zum Test möglicher Drifts der Feinstrukturkonstanten genutzt werden können. Der Vergleich von Übergängen, die eine Hyperfeinstruktur involvieren, könnte, wie bei bestimmten Übergängen in Molekülen, auch für die Untersuchung einer möglichen Variation des Elektronen-zu-Protonen-Massenverhältnisses  $\mu$  geeignet sein. Auch die Verwendung von HCIs für Tests auf lokale Lorentzinvarianz, analog zu [18], könnte vielversprechend sein, da die gleichen relativistischen Effekte, die zu einer erhöhten Empfindlichkeit eines Übergangs auf  $\alpha$ -Variation führen, für die Beurteilung der Sensitivität bzgl. lokaler Lorentzinvarianz, relevant sind.

Zwei Hindernisse zeichneten sich auf dem Weg zur Realisierung der theoretischen Vorschläge zur Entwicklung einer hoch-präzisen optischen Uhr mit einem HCI als Taktgeber und der anschließenden Suche nach Physik jenseits des Standardmodells ab. Zum einen sind die theoretischen Berechnungen der Übergangsfrequenzen in hochgeladenen Systemen in der Nähe von Niveau-Kreuzungen (engl. level-crossing) zu ungenau für hoch-präzise Laserspektroskopie (Genauigkeiten für komplexere Systeme, wie  $\text{Ir}^{17+}$ , liegen in der Größenordnung 1 %), so dass diese experimentell genauer vermessen werden müssen. Daher wurden, z.B. in Heidelberg Übergänge in  $\text{Ir}^{17+}$ , mittels Elektronenstoßanregung in einer EBIT und zeitgleicher konventioneller optischer Gitter-Spektroskopie, genauer, als Vorbereitung für die spätere Laserspektroskopie, vermessen [40]. Zum anderen standen bisher keine geeigneten experimentellen Methoden zum Kühlen und langfristigen Speichern von HCIs in Paulfallen, der Basis-Plattform optischer Ionen-Uhren, zur Verfügung. So liegt die

---

bisherige Präzision der Spektroskopie (optische Laserspektroskopie bzw. Gitterspektroskopie) an HCIs im optischen Bereich bei 0.3 ppm [7, 41, 42]. Hier ist also die spektroskopische Präzision ungefähr zehn Größenordnungen geringer als bei der Frequenzmetrologie mit einfach geladenen Ionen. Der Grund hierfür liegt darin, dass es sich bei dem Produktionsprozess hochgeladener Ionen um einen äußerst energetischen Prozess handelt, so dass das HCI-Ensemble z.B. in einer EBIT, Temperaturen im MK-Bereich besitzt.

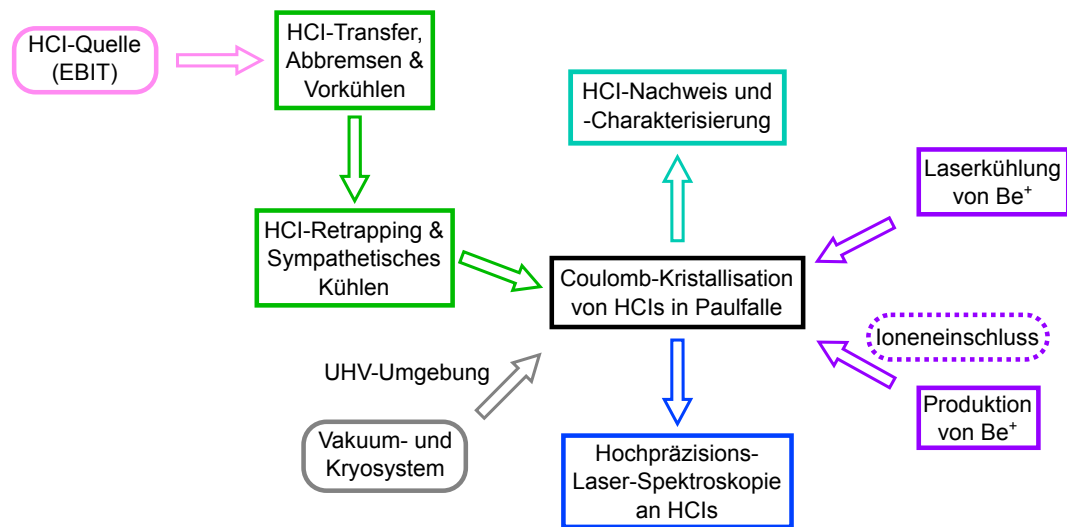
HCIs wurden bisher bereits in Penningfallen sympathetisch [43, 44] bis in den K-Bereich gekühlt [45–47]. Bei der Kühlmethode des sympathetischen Kühlens wird eine Ionensorte direkt laser-gekühlt, während die andere, durch die Coulomb-Interaktion mit den Kühlionen, Energie verliert. Die Methode wurde, neben Penningfallen, auch schon seit Jahrzehnten für einfach geladene Ionen in Paulfallen erfolgreich angewandt [43, 44]. So wird z.B. das  $\text{Al}^+$ -Ion der oben erwähnten NIST  $\text{Al}^+$ -Uhr sympathetisch gekühlt. Vor dieser Arbeit lag der höchste Ladungszustand eines, in einer Paulfalle sympathetisch gekühlten Ions, bei  $2+$ . Hier wurden  $\text{Ca}^{2+}$  in der Falle durch Photoionisation von bereits gespeicherten  $\text{Ca}^+$ -Ionen erzeugt [48]. Des Weiteren wurden  $^{229}\text{Th}^{3+}$  direkt in einer linearen Paulfalle gekühlt, nach dem sie in selbige, durch Laser-Ablation von einem Target in unmittelbarer Nähe der Paulfalle, geladen worden waren [49]. Da höher geladene Ionen zwar viele interessante Spektroskopie-, aber nur wenige geeignete Laserkühl-Übergänge aufweisen, ist die sympathetische Kühl-Methode am besten geeignet.

In der vorliegenden Arbeit wurde eine vielseitige Technik zur Präparation kalter, stark lokalisierter HCIs entwickelt und demonstriert. In einer Elektronenstrahlionenfalle (EBIT) werden HCIs im MK Temperaturbereich erzeugt und nach Injektion in eine lineare, kryogene Paulfalle in das mK Temperaturregime abgekühlt. Die Verfahrensweise des Abbremsens, Vorkühlens und anschließenden Multipass-Stoppens ermöglicht die HCI-Implantation in einen vorgespeicherten, kontinuierlich laser-gekühlten  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall. Dies fügt HCIs dem Repertoire an Quantensystemen für entsprechende Präzisionsexperimente hinzu.

Für die Präparation kalter hochgeladener Ionen für Frequenzmetrologie sind mehrere physikalische Bausteine notwendig, wie in Abb. 1 illustriert wird. Neben der Erzeugung und Langzeitspeicherung (lila) eines Coulomb-Kristalls aus Kühlionen (hier:  $\text{Be}^+$ ), zum sympathetischen Stoppen und Kühlen von HCIs, müssen sowohl die Erzeugung, der Ionentransfer als auch das Retrapping in der linearen Paulfalle und das sympathetische Stoppen der HCIs im kontinuierlich laser-gekühlten  $\text{Be}^+$ -Kristall (grün) charakterisiert und exakt kontrolliert werden.

Die Struktur der vorliegenden Arbeit orientiert sich an den schematisch in Abb. 1 dargestellten physikalischen Konzepten.

Im ersten Kapitel wird, im Rahmen der Langzeitspeicherung von lasergekühlten Coulomb-Kristallen, sowohl auf die Theorie zur Speicherung von Ionen in einer linearen Paulfalle, am Beispiel der verwendeten kryogenen, linearen Paulfalle CryP-TE<sub>x</sub> [50, 51], als auch auf das Laserkühlen von harmonisch gebundenen Ionen, am



**Abbildung 1:** Schematische Skizze der, für die Coulomb-Kristallisation von HCl in einer Paulfalle, notwendigen physikalischen Bausteine. Ziel ist die Hochpräzisions-Laser-Spektroskopie an HCl für fundamentale Physik und zur Entwicklung neuer Frequenzstandards.

Beispiel von  $\text{Be}^+$ -Ionen, eingegangen. Anschließend werden konkret die einzelnen Prozessschritte zur Präparation eines kontinuierlich lasergekühlten, in der Paulfalle schwebenden  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalls diskutiert. Dies reicht von der Betrachtung der Erzeugung eines atomaren Be-Strahls über die Photoionisation der Atome bis hin zur Dopplerkühlung. Es werden die notwendigen technischen Komponenten dargestellt, zusammen mit den dazugehörigen Abschätzungen, Berechnungen, Simulationen und Testmessungen. Ebenfalls inkludiert ist eine nähere Beschreibung des Laserkühlprozesses anhand der spektroskopischen Eigenschaften der  $\text{Be}^+$ -Ionen. Zum Abschluss des Kapitels wird eine Übersicht über den Strahlengang von Teilchen und Lasern um und in der Paulfalle gegeben und eine erste Abschätzung der Temperatur einzelner kristallisierter  $\text{Be}^+$ -Ionen vorgestellt.

Im zweiten Kapitel wird auf die einzelnen Prozessschritte des, im Rahmen dieser Arbeit entwickelten, Präparationskonzeptes kalter HCl in einer linearen Paulfalle eingegangen. Es beginnt mit theoretischen Vorüberlegungen zur Produktion und Extraktion von HCl in bzw. aus einer Elektronenstrahlionenfalle (EBIT, engl. electron beam ion trap) und zum Bremsvermögen von  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristallen für injizierte HCl.

Anschließend wird am Beispiel von Testmessungen die gepulste Extraktion aus der EBIT, zusammen mit der Selektion der gewünschten HCl-Sorte, vorgestellt. Nach der Besprechung von Schlüsselkomponenten der Vorkühl-Beamline, wird der Abbrems- und Vorkühlprozess, anhand eines theoretischen, analytischen Modells, SIMION-Simulationen, sowie dem Vergleich mit Testmessungen, charakterisiert.

Im folgenden Unterkapitel wird das Retrapping der HCl-Pakete in der linearen Paulfalle besprochen: vom Konzept des Ionen-Resonators zur effektiven Verlängerung des Kühlionen-Kristalls, über Messungen zum eindeutigen Nachweis des erfolgrei-

---

chen Retrappings von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen über dessen Optimierung durch den Vergleich mit Simulationen. Danach folgt zusammenfassend eine Darstellung typischer Energien und Effizienzen des gesamten Implantations-Prozesses.

Im letzten Teil des zweiten Kapitels wird auf die Charakterisierung der erzeugten Mischkristalle, bezüglich Ladung und Masse der implantierten HCIs, deren Verlustmechanismen und zuletzt deren Temperatur, mit Hilfe verschiedener Methoden, eingegangen. Neben dreidimensionalen Mischkristallen, werden hier auch gemischte Ionenketten bis hin zur, für Quantenlogik-Spektroskopie notwendigen, Konfiguration  $1\text{Kühlion}/1\text{HCl}$  betrachtet.





---

# Langzeitspeicherung lasergekühlter Coulomb-Kristalle

---

*„....an atomic particle at rest in free space  
is discussed, and shown to be approximable by  
zero-point confinement of the particle in a laboratory trap.“*  
Hans Dehmelt [52]

Die Laserkühlung und Speicherung mikroskopischer Teilchen sind von zentraler Bedeutung für die moderne Atomphysik. Im Gegensatz zu z.B. neutralen Atomen sind Kühlung und Speicherung für Ionen zwei getrennte Prozesse. So können extern injiziert HCLs für mehrere 10ms in der linearen Paulfalle ohne jegliche Kühlung gespeichert werden. Und auch die einfach geladenen  $\text{Be}^+$ -Kühlionen können bei Blockierung der Kühlaser sogar noch deutlich länger in der Falle überleben.

Die Ionenspeicherung bezieht sich hier auf den Einschluss des Teilchen-Ensembles in eine mikroskopisch kleine Raumregion, während Kühlung mit einer Phasenraum-Kompression gleichzusetzen ist. In diesem Kapitel werden zuerst getrennte, theoretische Überlegungen zur Ionenspeicherung und zur Laserkühlung harmonisch gebundener Ionen angestellt. Für den Einschluss der Ionen wird dabei eine dreidimensionale, positionsabhängige Kraft benötigt, während eine geschwindigkeitsabhängige Kraft die Breite der Impulsverteilung der Ionen reduzieren kann. Im Falle der Laserkühlung basiert die geschwindigkeitsabhängige Kraft auf der resonanten Photonenstreuung an sich bewegenden Ionen.

Der Rest des Kapitels beschäftigt sich konkret mit der Erzeugung von  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristallen in einer linearen, kryogenen Paulfalle. Dazu gehört das Laden der Kühlionen in die Falle, sowie deren anschließende Laserkühlung. Am ende wird die Temperatur eines einzelnen  $\text{Be}^+$ -Ions in CryPTEx experimentell bestimmt.

## 1.1 Theorie der Ionenspeicherung in einer linearen Paulfalle

Die Möglichkeit Atome -sogar ein einzelnes- isoliert von ihrer Umgebung für lange Zeit im Vakuum in der Schwebe zu halten treibt seit den 50er Jahren atomphysikalische Experimente im Bereich der Präzisionsmessungen entscheidend voran. Dies zeigte sich schon früh durch die Vergabe des Physik-Nobelpreises an W. Paul und H. G. Dehmelt (zusammen mit N. F. Ramsey) im Jahr 1989 für ihre wegweisenden Arbeiten zum Einschluss geladener Atome in "Käfigen ohne materielle Wände" [53,54]. Elektromagnetische Felder  $(\vec{E}, \vec{B})$  beeinflussen durch die Lorentzkraft  $\vec{F}_L = Qe(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B})$  die Bewegung geladener Atome. Damit ist es naheliegend durch maßgeschneiderte elektrische und magnetische Felder Fallen zu designen, die einzelne oder eine Vielzahl von Ionen in einem mikroskopischen Volumen einschließen.

Um ein einzelnes Ion an einem Punkt im Raum - der Fallenregion - über lange Zeit zu lokalisieren muss man die Form der elektromagnetischen Felder so wählen, dass an diesem Punkt ein potentiell Energieminimum für das Teilchen vorliegt. In diesem Fall erfährt das Ion bei Auslenkungen in eine beliebige Richtung aus der stabilen Gleichgewichtslage eine rücktreibende Kraft.

Ein solches dreidimensionales Extremum des elektrischen Potentials  $\Phi(x, y, z)$  kann im ladungsfreien Raum laut dem Earnshaw'schen Theorem [55] nicht mittels elektrostatischer Felder erzeugt werden. Der Beweis folgt direkt aus der Laplace-Gleichung (in kartesischen Koordinaten) der klassischen Elektrodynamik:

$$\Delta\Phi = \frac{\partial^2\Phi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2\Phi}{\partial y^2} + \frac{\partial^2\Phi}{\partial z^2} = 0. \quad (1.1)$$

Die zweiten partiellen Ableitungen von  $\Phi(x, y, z)$  können nicht alle positiv (Potentialminimum) oder negativ (Potentialmaximum) sein und gleichzeitig Gleichung (1.1) erfüllen. Lösungen der Laplacegleichung (1.1) sind harmonische Funktionen und nehmen daher ihre Extrema auf dem Randbereich, d.h. an den Elektroden, an. Diese grundsätzliche Limitierung des Ioneneinschlusses kann jedoch durch die Hinzunahme magnetischer Felder oder durch das Fangen mittels dynamischer elektrischer Felder umgangen werden.

Geladene Teilchen können unter anderem durch die Überlagerung statischer elektrischer und magnetischer Felder (Penningfalle [56]), durch schnell oszillierende elektrische Felder starker Laserstrahlen (optische Dipolfalle bzw. eindimensionales optisches Gitter für Ionen [57–59]), sowie durch langsamer oszillierende elektrische Felder bei Radiofrequenzen (Paul- bzw. Radiofrequenzfalle [54]) dreidimensional in einem mikroskopischen Volumen lokalisiert werden. Für vertiefte Informationen über eine Auswahl verschiedener Ionenfallen sei auf folgende Referenzen verwiesen: [54,60–62]. Für die Experimente dieser Arbeit wurden zwei verschiedene Arten von Ionenfallen verwendet. Eine Elektronenstrahlionenfalle und eine Paulfalle, wobei nur letztere die notwendige Isolation von der Umgebung gewährleisten kann, die für die Realisierung von Hochpräzisionsmessungen notwendig ist.

Die ursprüngliche Radiofrequenzfalle, die von W. Paul und Mitarbeitern entwickelt wurde, besteht geometrisch aus der Kombination eines einschaligen Hyperboloids

als Mittelelektrode, sowie eines zweischaligen Hyperboloids für die Endkappenelektroden. Inzwischen existieren diverse Fallengeometrien zur Realisierung eines Quadrupolwechselfeldes, oft in Kombination mit einem zusätzlichen elektrostatischen Potential. So wurden z.B. planare Paulfallen auf Mikrochipbasis [63, 64] sowie makroskopische lineare Paulfallen [65], bei denen die Geometrie in eine Raumachse verlängert wurde, entwickelt. Die offene Bauweise der linearen Paulfalle ermöglicht nicht nur eine bessere Fluoreszenzdetektion und die Möglichkeit bis zu  $10^5$  Ionen gleichzeitig zu speichern [66], sondern auch die erleichterte Injektion extern erzeugter Ionen, weshalb dieser Radiofrequenzfallen-Typ für das vorliegende Experiment ausgewählt wurde.

Im Folgenden wird die Einzelteilchendynamik für das Modell der linearen Paulfalle hinsichtlich Prinzip, Stabilitätsbedingungen und Beschreibung durch das ponderomotorische Pseudopotenzial analysiert.

### 1.1.1 Radialer Einschluss

Das Quadrupol-Massenfilter [67–69], bestehend aus vier langen hyperbolisch geformten Elektroden in Quadrupolanordnung, gilt als Vorläufer der linearen Paulfalle. Bei perfekter Fertigung der hyperbolischen Elektroden kann man mit dieser Anordnung ein zeitabhängiges, harmonisches Potential der Form

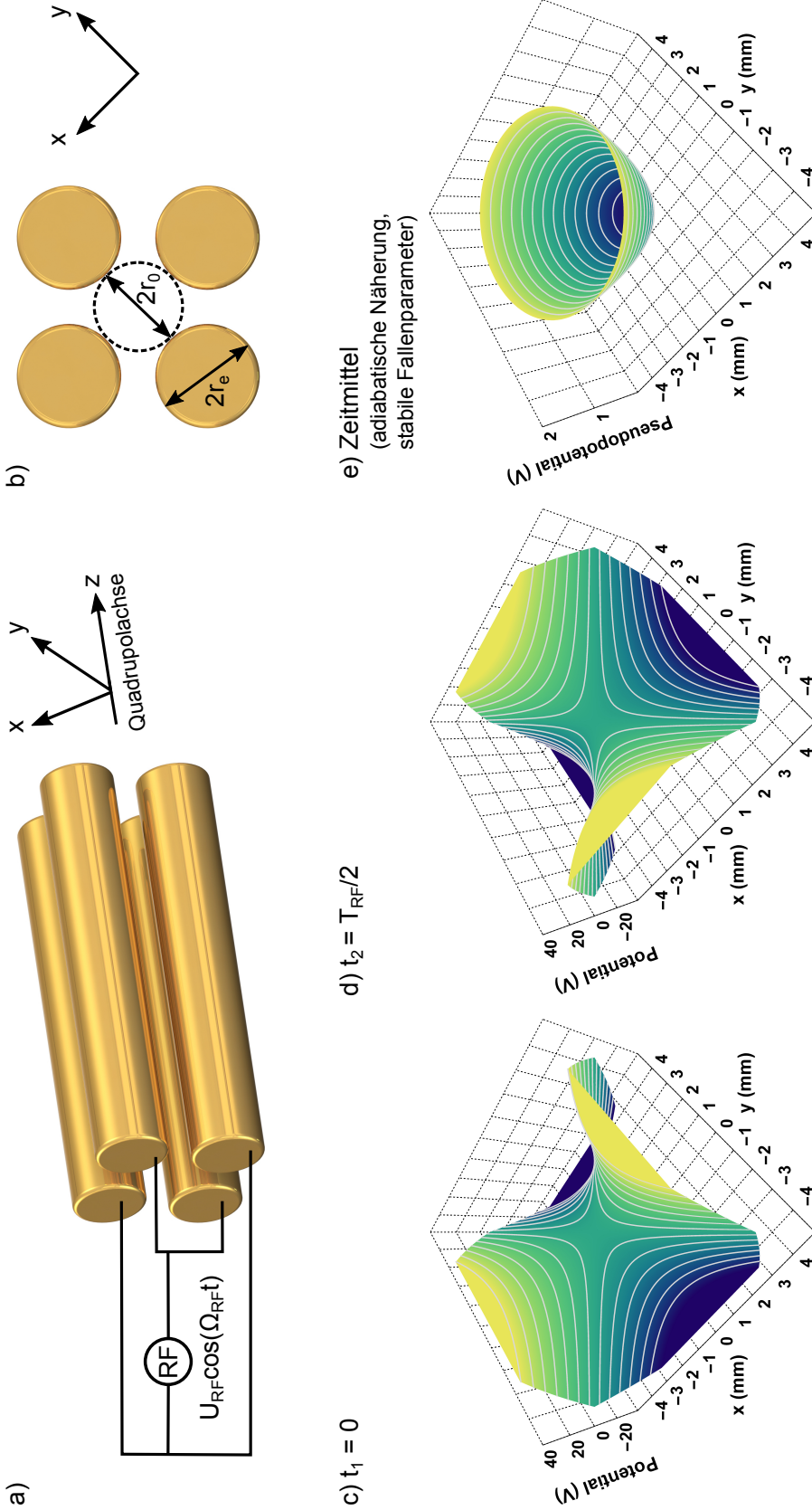
$$\Phi(x, y, t) = \frac{\Phi_0(t)}{2r_0^2}(x^2 - y^2) \quad (1.2)$$

erzeugen, das die Maxwellgleichungen (1.1) erfüllt. Die Äquipotentiallinien  $x^2 - y^2 = \text{const.}$  werden, wie erwartet, durch Hyperbelgleichungen beschrieben. Die zeitabhängige Amplitude  $\Phi_0(t)$  setzt sich im allgemeinen Fall zusammen aus einer Wechselspannung  $U_{RF}$  mit Radiofrequenz  $\Omega_{RF}$  und einem radialen Gleichspannungsanteil  $V_{DC}^{rad.}$ :

$$\Phi_0(t) = U_{RF} \cos(\Omega_{RF}t) + V_{DC}^{rad.} \quad (1.3)$$

Aufgrund der geringeren Anforderungen an die Fertigung wurde für das Experiment dieser Arbeit eine Elektrodenkonfiguration mit Quadrupolsymmetrie aber zylindrischem Querschnitt der Einzelelektroden gewählt. Diese sind zusammen mit den wichtigsten Bezeichnungen in Abb. 1.1 a) und b) gezeigt. Das Verhältnis  $r_e/r_0$  von Elektrodenradius  $r_e$  zu halbem Abstand diagonal gegenüberliegender Elektroden  $r_0$  wurde dabei zu  $r_e/r_0 = 1.143$  gewählt. Er weicht somit weniger als 3% von dem in Referenz [70] geforderten Verhältnis  $r_e/r_0 = 1.146$  ab, bei dem Beiträge höherer Ordnung in der Multipolentwicklung des Potentials, basierend auf zylindrisch geformten Elektroden, am stärksten unterdrückt werden.

Die Abbildungen 1.1 c) und d) stellen die sattelförmige Struktur des, für realistische experimentelle Parameter, berechneten Potentials in einer beliebigen Ebene entlang der Quadrupolachse dar. Sie zeigen Momentaufnahmen maximaler Amplitude im zeitlichen Abstand einer halben RF-Periodendauer. Das zeitlich veränderliche Potential übt abwechselnd fokussierende und defokussierende Kräfte auf Ionen, die sich in der Quadrupolregion außerhalb der Achse aufhalten, aus. Das auf dem Potential



**Abbildung 1.1:** a), b): Durch Anlegen geeigneter RF-Felder an vier Stabelektroden in Quadrupolkonfiguration wird ein radialer Einschluss der Ionen senkrecht zur Quadrupolachse  $z$  erzeugt. Die im Experiment verwendeten vier  $2r_e = 8$  mm großen Stäbe befinden sich auf den Ecken eines Quadrates mit 10.6 mm Kantenlänge ( $2r_0 = 7$  mm). c), d): Berechnung der Oszillation mit Periodendauer  $T_{RF} = 2\pi/\Omega_{RF}$  des zeitabhängigen elektrischen Potentials, das seine Extrema  $\pm \frac{1}{2}U_{RF}$  innerhalb der Elektroden annimmt und eine Sattelfläche in der Umgebung der Quadrupolachse ausbildet. Die hyperbolischen Äquipotentiallinien sind in grau eingezeichnet. e): Die Wahl für ein bestimmtes  $Q/M$ -Verhältnis- geeigneter RF-Spannungsamplituden und -frequenzen kann im Zeitmittel zu einer zweidimensionalen (in der  $x$ - $y$ -Ebene) rücktreibenden Kraft führen, die durch das zeitunabhängige radiale Pseudopotential beschrieben werden kann.

aus Gleichung (1.2) basierende Kraftfeld ist nicht homogen, sondern hängt linear vom Abstand der Ionenposition zur Symmetrieachse ab. Hierdurch erfahren Ionen, die weiter von der Quadrupolachse entfernt sind, eine stärkere Kraft. Durch geeignete Wahl der experimentellen Parameter, RF-Frequenz und -Amplitude, kann dann erreicht werden, dass sich das Potential genau so ändert, dass die defokussierende Kraft auf das Ion wirkt, wenn es sich näher an der Achse befindet. In diesem Fall ist der defokussierende Effekt des Kraftfelds im zeitlichen Mittel schwächer ausgeprägt als der fokussierende (siehe Abb. 1.1 e)). Die Aufrechterhaltung dieser Bedingung über einen ausgedehnten Zeitraum führt somit zu stabilen radialen Einschlussbedingungen.

Mit Hilfe des nach Gleichungen (1.2), (1.3) und der Beziehung  $\vec{E} = -\nabla\Phi$  bekannten elektrischen Feldes lassen sich die Newtonschen Bewegungsgleichungen  $M\ddot{\vec{r}} - Qe\vec{E} = 0$  für ein Ion mit Masse  $M$  und Ladung  $Qe$ , für die Quadrupolkonfiguration aus Abbildung 1.1, aufstellen:

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 x}{\partial t^2} + \frac{Qe}{M} \frac{U_{RF} \cos(\Omega_{RF}t) + V_{DC}^{rad}}{r_0^2} x &= 0 \\ \frac{\partial^2 y}{\partial t^2} - \frac{Qe}{M} \frac{U_{RF} \cos(\Omega_{RF}t) + V_{DC}^{rad}}{r_0^2} y &= 0. \end{aligned} \quad (1.4)$$

Substitution der dimensionslosen Stabilitätsparameter  $a$  und  $q$  und der dimensionslosen Zeit  $\tau$

$$a_x = -a_y = a = \frac{4QeV_{DC}^{rad}}{M\Omega_{RF}^2 r_0^2}, \quad q_x = -q_y = q = \frac{2QeU_{RF}}{M\Omega_{RF}^2 r_0^2}, \quad \tau = \frac{1}{2}\Omega_{RF}t \quad (1.5)$$

in die Gleichungen (1.4) führt auf die Mathieschen Gleichungen der Form

$$\frac{\partial^2 \rho}{\partial \tau^2} + (a_\rho - 2q_\rho \cos(2\tau))\rho = 0, \quad \rho = x, y. \quad (1.6)$$

Die allgemeine Lösung der Mathieschen Differentialgleichung (1.6) ist bekannt [60]:

$$\rho(\tau) = A_\rho e^{\mu_\rho \tau} \sum_{n=-\infty}^{\infty} C_{n\rho} e^{2ni\tau} + B_\rho e^{-\mu_\rho \tau} \sum_{n=-\infty}^{\infty} C_{n\rho} e^{-2ni\tau}, \quad \rho = x, y. \quad (1.7)$$

Für eine ausführliche Betrachtung sei auf [60] verwiesen. Die Parameter  $A_\rho$  und  $B_\rho$  hängen ausschließlich von den Anfangsbedingungen  $\rho_0, \dot{\rho}_0, \tau_0$  ab, während  $C_{n\rho}$  und der charakteristische Exponent  $\mu_\rho$  nur alleinig durch die Stabilitätsparameter  $a_\rho, q_\rho$  bestimmt sind.

### Stabilitätskriterien

Die Lösungen (1.7) sind stabil, wenn die Amplitude  $\rho$  der Teilcentrajektorie für  $\tau \rightarrow \infty$  und beliebige Anfangsbedingungen beschränkt bleibt. Dies wird durch die charakteristischen Koeffizienten  $\mu_\rho = \alpha_\rho + i\beta_\rho$  mit  $\alpha_\rho, \beta_\rho \in \mathbb{R}$  festgelegt.

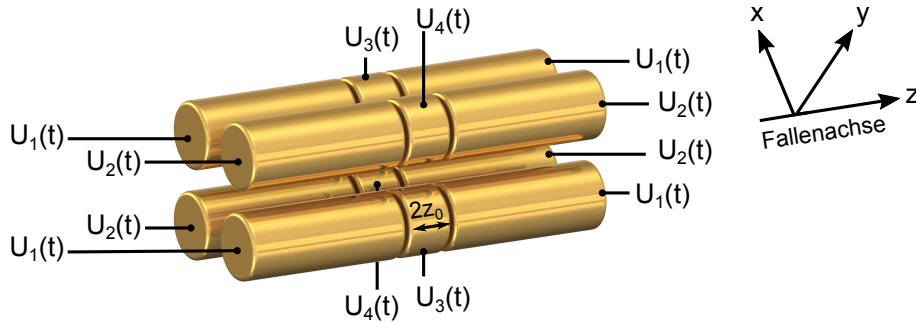
Für  $\alpha_\rho \neq 0$  divergiert einer der Faktoren  $e^{\pm\mu_\rho\tau}$  und die Teilchenbahn ist instabil. Falls  $\mu_\rho$  rein imaginär und  $\beta_\rho$  keine ganze Zahl ist, ergeben sich periodische, stabile Teilchentrajektorien. Ganzzahlige  $\beta_\rho$  Werte ergeben sich für  $(a, q)$ -Parameterpaare, welche die Grenze zwischen stabilen und instabilen Teilchenbahnen bilden. Nur  $(a, q)$ -Paare mit stabilen Teilchenbahnen, sowohl in x- als auch in y-Richtung, erzeugen einen stabilen radialen Einschluss des Ions. Welcher Bereich in der  $(a, q)$ -Ebene zum stabilen 2- oder 3-dimensionalen Einschluss eines Ions führt hängt auch von der Geometrie der Elektrodenkonfiguration ab. So ergeben sich z.B. unterschiedliche Stabilitätsdiagramme für die hyperbolische 3-dim. Paulfalle, die lineare Paulfalle und den Quadrupol-Massenfilter (vergleiche Abb. 1.4 und Referenz [60]).

Die Berechnung der Grenzkurven zwischen stabilen und instabilen Lösungen im  $(a, q)$ -Raum kann nur numerisch durchgeführt werden. So können z.B. mittels Mathematica 10 die Grenzwerte für den Mathieuschen  $a$ -Parameter für gerade (ungerade) Mathieufunktionen  $n$ -ter Ordnung, in Abhängigkeit des  $q$ -Parameters, über die Funktionen  $a = \text{MathieuCharacteristicA}(B)[n, q]$  bestimmt werden.

Stabile Lösungen sind für den Fall des radialen 2-dimensionalen Einschlusses, der in diesem Unterkapitel diskutiert wurde, in Abb. 1.4 visualisiert und werden in Kapitel 1.1.3 mit dem Stabilitätsdiagramm der linearen Paulfalle verglichen. Es werden ausschließlich die Stabilitätsbereiche in der Umgebung des  $(a, q)$ -Ursprungs betrachtet, da dieser Bereich aufgrund der niedrigeren Spannungen typischerweise für Ionenexperimente gewählt wird.

### 1.1.2 Axialer Einschluss

Bisher wurde nur der radiale, d.h. entlang der Quadrupolachse schichtweise zweidimensionale, Einschluss eines geladenen Teilchens, aufgrund der Elektrodenkonfigu-



**Abbildung 1.2:** Modell einer segmentierten linearen Paulfalle. Die Falle besteht aus vier Stabelektroden in Quadrupol-Massenfilter-Konfiguration. Die Stäbe sind je in drei Teile segmentiert, so dass an die insgesamt acht Endkappenelektroden für den axialen Einschluss positiv geladener Ionen eine positive Gleichspannung angelegt werden kann. Es werden minimal folgende Spannungen  $U_i(t)$  an die einzelnen Elektroden angelegt:  $U_1(t) = (U_{RF}/2)\cos(\Omega_{RF}t) + U_{DC}$ ,  $U_2(t) = -(U_{RF}/2)\cos(\Omega_{RF}t) + U_{DC}$ ,  $U_3(t) = (U_{RF}/2)\cos(\Omega_{RF}t)$ ,  $U_4(t) = -(U_{RF}/2)\cos(\Omega_{RF}t)$ . Der Ursprung des Koordinatensystems liegt im Fallenzentrum. Für die im Experiment verwendete lineare Falle gilt  $2z_0 = 5.4 \text{ mm}$ .

ration nach Abb. 1.1, betrachtet. Aufgrund der zylindersymmetrischen Anordnung der Stabelektroden nach Abb. 1.1 gibt es keinen Potentialgradienten entlang der Quadrupolachse  $z$ .

Der axiale Einschluss des Teilchens entlang der  $z$ -Achse kann durch statische elektrische Felder erzeugt werden, z.B. indem jede Stabelektrode in drei individuell ansteuerbare ( $U_{DC}$ ,  $U_{RF}$ ) Elektroden segmentiert wird (siehe Abb. 1.2). Die acht sogenannten Endkappenelektroden erzeugen bei geeigneter geometrischer Wahl ein, in erster Ordnung, harmonisches Potential entlang der Fallenachse  $z$ , wie in Abb. 1.3 gezeigt.

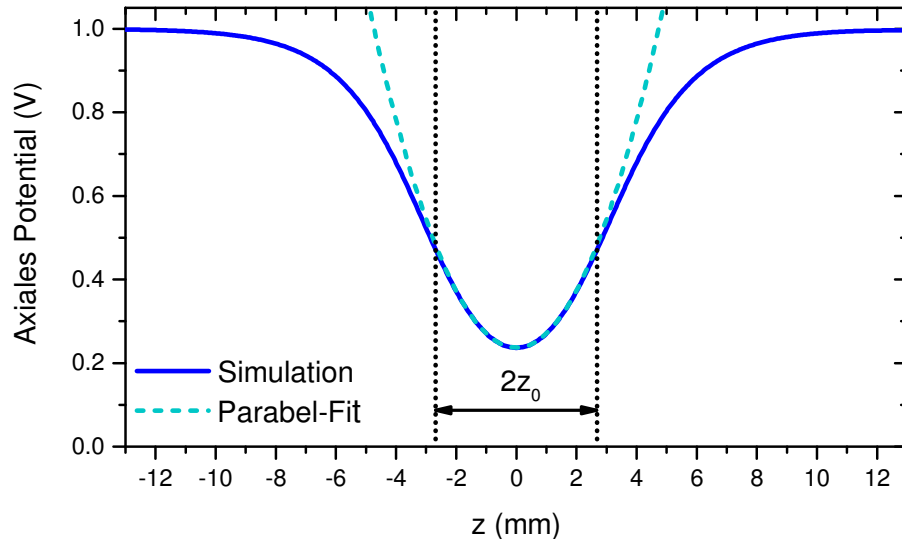
Für den axialen Einschluss positiv geladener Ionen werden alle Endkappenelektroden auf ein, im Vergleich zu den sogenannten Mittelelektroden positives DC-Potential  $U_{DC}$ , gesetzt. Durch die Hinzunahme elektrostatischer Einschluss-Felder verliert sich die Möglichkeit simultan Teilchen entgegen gesetzter Ladungen zu speichern, wie es bei einer hyperbolischen Paulfalle möglich ist.

Die Form des axialen Fallenpotentials lässt sich in der Umgebung des Fallenzentrums, aufgrund des Elektrodendesigns, näherungsweise durch den folgenden Ausdruck beschreiben:

$$\Phi(z)_z = \frac{\eta U_{DC}}{z_0^2} z^2. \quad (1.8)$$

Die Krümmung der Parabel nach Gleichung (1.8) ist durch die experimentell an die Endkappenelektroden anzulegende Spannung  $U_{DC}$ , den geometrischen Korrekturfaktor  $\eta$  und die Länge  $2z_0$  einer Mittelelektrode bestimmt. Sie hängt also allein von Geometrie der Elektrodenanordnung und angelegter DC-Spannung ab.

Für die vorliegende Arbeit wurde der Geometriefaktor  $\eta$  der linearen Paulfalle (Län-



**Abbildung 1.3:** Simulation (SIMION) des axialen elektrischen Potentials entlang der Fallenachse  $z$  für die experimentelle Fallenkonfiguration und  $U_{DC} = 1$  V. Ein quadratischer Fit an den zentralen Bereich (Fitbereich:  $\pm 1$  mm) ergibt für den Geometriefaktor (vergleiche Gleichung (1.8))  $\eta = 0.249$ .

ge der Mittelelektroden:  $2z_0 = 5.4$  mm, Länge der Aussenelektroden:  $l = 20$  mm) mittels einer numerischen Simulation (SIMION) bestimmt. Der simulierte Potentialverlauf entlang der Fallenachse  $z$  ist in Abbildung 1.3 für  $U_{DC} = 1$  V als durchgezogene, dunkelblaue Linie zu sehen. Ein Parabel-Fit der Form

$$\Phi(z)_z = \frac{\eta U_{DC}}{z_0^2} (z - z_c)^2 + \kappa U_{DC} \quad (1.9)$$

mit  $z_c = 0$  mm ist als gestrichelte, hellblaue Linie dem simulierten Potentialverlauf überlagert. Aus den Fit-Parametern ergibt sich für den dimensionslosen, geometrischen Korrekturfaktor  $\eta = 0.249$  und für  $\kappa$  erhält man  $\kappa = 0.237$ .

Die axiale Fallenfrequenz  $\omega_z$  eines geladenen Teilchens mit Ladung  $Qe$  und Masse  $M$  im harmonischen Potential  $\Phi(z)_z$  ist nach den bekannten Gleichungen  $F_z = -Qe\partial\Phi(z)_z/\partial z = -kz$  und  $k = M\omega_z^2$  des harmonischen Oszillators durch

$$\omega_z = \sqrt{\frac{2\eta U_{DC} Qe}{M z_0^2}} \quad (1.10)$$

gegeben.

### 1.1.3 Stabilitätsdiagramm und ponderomotorisches Pseudopotential

Die radiale Einzelteilchendynamik, basierend auf dem Konzept des Quadrupol-Massenfilters (vergleiche Kapitel 1.1.1), stellt nur dann eine ausreichende Näherung dar, wenn die Länge der Mittelelektroden viel länger als der radiale Elektrodenabstand ist [71]. Bei der, für die Experimente der folgenden Arbeit konzipierten Paulfalle, ist die Länge der Mittelelektroden verhältnismäßig lang.

Damit muss der axiale Einschluss eines geladenen Teilchens durch elektrostatische Felder auch bei der Berechnung des radialen Einschlusses Berücksichtigung finden, da die Laplace-Gleichung (1.1) alle Raumrichtungen miteinander verknüpft. In der Umgebung der Fallenmitte und mit angelegten Elektrodenspannungen nach Abb. 1.2 erhält man jetzt das dreidimensionale Einschlusspotential

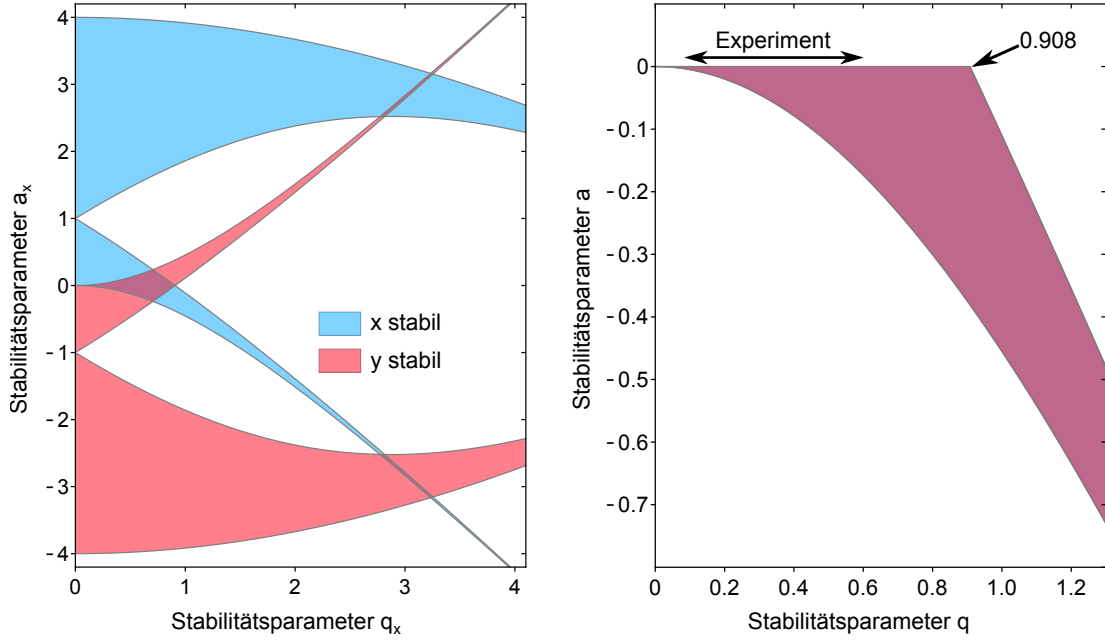
$$\Phi(x, y, z, t) = \frac{\Phi_0(t)}{2r_0^2} (x^2 - y^2) + \frac{\eta U_{DC}}{z_0^2} z^2 - \frac{\eta U_{DC}}{2z_0^2} (x^2 + y^2). \quad (1.11)$$

Wie direkt an Gleichung (1.11) ersichtlich tritt entlang der Fallenachse  $z$  ( $x = 0, y = 0$ ) kein RF-Feld auf. Hier erfahren Ionen keine Kraft durch die RF-Spannungen an den Elektroden, was ein weiterer Vorteil der linearen Paulfalle gegenüber der 3-dim. hyperbolischen Paulfalle darstellt.

Der letzte Term in Gleichung (1.11) schwächt das Potential in radialer Richtung. Dieser Effekt wird berücksichtigt, indem die Stabilitätsparameter  $a_\rho$  des 2-dim. Einschlusses (definiert durch Gleichung (1.5), Kapitel 1.1.1) wie folgt modifiziert werden:

$$a_x \rightarrow a_x + a_z, \quad a_y \rightarrow a_y + a_z, \quad a_z = a = -\frac{4\eta U_{DC} Qe}{M \Omega_{RF}^2 z_0^2}. \quad (1.12)$$





**Abbildung 1.4:** Einzelionen-Stabilitätsdiagramme für den zweidimensionalen Quadrupol-Massenfilter (links) und die dreidimensionale lineare harmonische Paulfalle mit kurzen Mittelelektroden (rechts; farbiger Bereich: x und y gleichzeitig stabil); berechnet in der Nähe des  $(q, a)$ -Ursprungs.

Insbesondere für den Fall  $V_{DC}^{rad} = 0$  ergeben sich die zu den Gleichungen (1.6) analogen radialen Mathieuschen Bewegungsgleichungen:

$$\frac{\partial^2 \rho}{\partial \tau^2} + (a_z - 2q_\rho \cos(2\tau))\rho = 0, \quad \rho = x, y. \quad (1.13)$$

Lösungen für Gleichung (1.13), die stabilen Teilchentrajektorien entsprechen, lassen sich analog zu dem in Kapitel 1.1.1 für Gleichung (1.6) beschriebenen Vorgehen finden. Das 3-dim. Stabilitätsdiagramm für die lineare Paulfalle ist in Abbildung 1.4 zusammen mit dem entsprechenden 2-dim. Stabilitätsdiagramm für das Quadrupol-Massenfilter gezeigt.

Der deutlichste Unterschied zwischen den Gleichungen (1.13) und (1.6) besteht darin, dass das Vorzeichen für den Term, der den  $a$ -Parameter enthält, im Falle der linearen Paulfalle unabhängig von  $x$ - und  $y$ -Richtung ist. Die Bedingungen für eine stabile Teilchenbewegung sind folglich für die beiden radialen Richtungen identisch und in Abb. 1.4 dargestellt. Die Bedingung  $a_z < 0$  gewährleistet eine stabile Bewegung des Ions entlang der Fallennachse [71].

Im Gegensatz zum Quadrupol-Massenfilter oder der ursprünglichen 3-dim. hyperbolischen Paulfalle, können für die lineare Paulfalle alle  $q$ -Parameter und damit RF-Spannungsamplituden zu stabilen Einschlussbedingungen führen. Allerdings wird für hohe Werte von  $q$  der mögliche Wertebereich des  $a$ -Parameters zunehmend schmaler. Für im Experiment typische Fallenparameter sind  $|a| < 5 \times 10^{-3}$  und  $q <$

0.6, wie in Abbildung 1.4, eingezeichnet.

### Adiabatische Approximation - Mikro- und Makrobewegung

Für den experimentell interessanten Bereich  $|a|, |q| \ll 1$  kann der charakteristische Exponent  $\mu_\rho = i\beta_\rho$  für die stabilen Lösungen der radialen Mathieugleichungen durch  $\beta_\rho = \sqrt{a_\rho + q^2/2}$  angenähert werden. Die Fourierreihenentwicklung von  $\rho$  kann damit auf die Terme  $n = -1, 0, 1$  beschränkt werden und man erhält folgende stabile Näherungslösung für die radiale Bewegungsgleichung des Ions:

$$\rho(t) = A_\rho \left[ 1 - \frac{q}{2} \cos(\Omega_{RF} t) \right] \cos(\omega_\rho t + \phi_\rho). \quad (1.14)$$

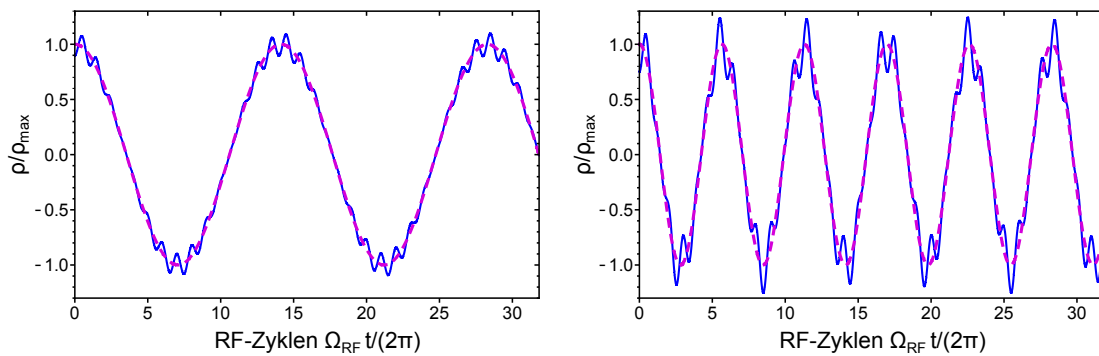
Dabei hängen die Amplitude  $A_\rho$  und die Phase  $\phi_\rho$  von den Anfangsbedingungen ab und es gilt für die Frequenz  $\omega_\rho$  mit  $\rho = x, y$  [60]:

$$\omega_\rho = \frac{\Omega_{RF}}{2} \sqrt{\frac{q^2}{2} + a_\rho}. \quad (1.15)$$

Diese sogenannte adiabatische Approximation weicht für  $q < 0.4$  weniger als 5% von der tatsächlichen Lösung ab. Für  $q < 0.6$  liegt die Abweichung unter 10%.

Gleichung (1.14) zeigt explizit, dass es sich bei der Ionenbewegung in adiabatischer Näherung um eine Überlagerung zweier Oszillationen handelt. Die Amplitude der oszillatorischen Ionenbewegung mit der Säkularfrequenz  $\omega$  ist mit der RF-Frequenz  $\Omega_{RF}$  moduliert.

Die Oszillation mit  $\omega_\rho$  (Makrobewegung) ist verglichen mit der schnelleren, überlagerten Mikrobewegung mit der Frequenz  $\Omega_{RF}$  für typische Fallenbedingungen ca.



**Abbildung 1.5:** Normierte eindimensionale Trajektorie (durchgezogen, blau) eines einzelnen Ions entlang  $\rho$  (x oder y), berechnet für einen radialen Mathieu-Stabilitätsparameter von  $q = 0.2$  (links) bzw.  $q = 0.5$  (rechts) und jeweils  $a = 0$ . Es handelt sich um die Überlagerung einer schnellen Oszillation kleiner Amplitude mit der RF-Frequenz  $\Omega_{RF}$  und einer typischerweise deutlich langsameren Oszillation (gestrichelt, magenta) im Pseudopotential mit der Frequenz  $\omega_\rho = \Omega_{RF}/2\sqrt{a + q^2/2}$ . Die Amplitude der schnellen Mikrobewegung wächst mit zunehmendem Abstand  $\rho$  von der Quardrupalachse an.

einen Faktor 20 langsamer.

In Abbildung 1.5 sind eindimensionale Beispiel-Trajektorien für ein einzelnes Ion, bei Speicherung mit verschiedenen  $q$ -Parametern und für spezielle Anfangsbedingungen ( $A_\rho = \rho_{max}$  und  $\phi_\rho = 0$ ), gezeigt. Man erkennt, dass die Amplitude der Mikrobewegung von der Ionenposition, genauer von seinem Abstand zur Fallenachse, abhängt. Auf der Fallenachse verschwindet die reguläre Mikrobewegung, während ihre Amplitude an den Umkehrpunkten maximal (aber Faktor  $q/2$  kleiner als die Amplitude der Makrobewegung) wird. Die Oszillation mit der RF-Frequenz ist vorhanden, sobald sich das Ion radial von der Fallenachse wegbewegt. Da es sich um eine getriebene Bewegung handelt kann diese höchstens in der Amplitude reduziert werden, z.B. durch Reduktion der Amplitude der Makrobewegung durch Kühlen. Die Gültigkeit der adiabatischen Näherung wurde bereits in den 1960ern durch Wuerker et al. [72] visuell, durch fotografische Aufnahmen von Teilchentrajektorien einzelner  $\mu\text{m}$ -großer geladener Eisen- und Aluminiumteilchen bei langsamen Fallenfrequenzen, bestätigt. Dort ist deutlich zu erkennen, dass bei zeitlicher Mittelung über eine RF-Periode ausschließlich die Makrobewegung, basierend auf den Frequenzen  $\omega_i$  ( $i = x, y, z$ ), übrig bleibt, analog zu der 1-dimensionalen Darstellung in Abb. 1.5.

### Pseudopotential

Die 3-dimensionale Ionenbewegung in einer linearen Paulfalle kann also in adiabatischer Näherung durch die Überlagerung dreier harmonischer Oszillationen mit den sogenannten Fallenfrequenzen  $\omega_i$  ( $i = x, y, z$ ) beschrieben werden. Dies legt die Definition eines zeitunabhängigen Pseudopotentials  $\Psi_{Pseudo}$  nahe, das die über eine RF-Periode  $T_{RF} = 2\pi/\Omega_{RF}$  zeitlich-gemittelte Ionenbewegung  $\bar{\rho}(t) = 1/T_{RF} \int_t^{t+T_{RF}} \rho(t') dt'$  liefert. Für die meisten Experimente, mit in linearen Paulfallen gespeicherten Ionen, gilt  $\omega_z < \omega_x \approx \omega_y$  und es ergibt sich in adiabatischer Approximation ( $|a_z|, |q| \ll 1$ ) folgende Beschreibung des asymmetrischen, harmonischen ponderomotorischen Pseudopotentials (veranschaulicht in Abb. 1.6):

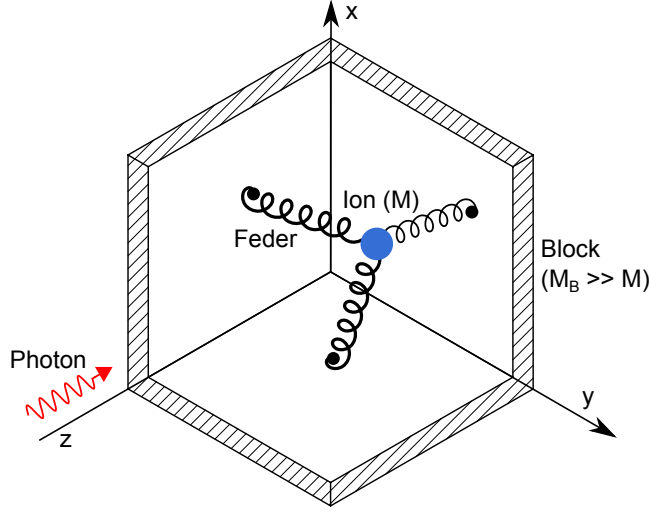
$$\Psi_{Pseudo}(x, y, z) = \frac{1}{Qe} \frac{M}{2} (\omega_x^2 x^2 + \omega_y^2 y^2 + \omega_z^2 z^2) \quad (1.16a)$$

$$\omega_x = \frac{\Omega_{RF}}{2} \sqrt{\frac{q^2}{2} + a_x} = \sqrt{\omega_0^2 + \frac{QeV_{DC}^{rad}}{Mr_0^2} - \frac{1}{2}\omega_z^2} \quad (1.16b)$$

$$\omega_y = \frac{\Omega_{RF}}{2} \sqrt{\frac{q^2}{2} + a_y} = \sqrt{\omega_0^2 - \frac{QeV_{DC}^{rad}}{Mr_0^2} - \frac{1}{2}\omega_z^2} \quad (1.16c)$$

$$\omega_z = \frac{\Omega_{RF}}{2} \sqrt{-2a_z} = \sqrt{\frac{2Qe\eta U_{DC}}{M z_0^2}}, \quad (1.16d)$$

wobei die Fallenfrequenzen  $\omega_i$  vollständig durch die Mathieschen Stabilitätsparameter und die RF-Frequenz charakterisiert sind. Die Stärke des 3-dim. Fallenpotentials



**Abbildung 1.6:** Mechanisches Analogon für ein im harmonischen Pseudopotential gebundenes Ion. In der simplifizierten Darstellung sind die Bindungskräfte durch (masselose) Federn dargestellt. Im Experiment hingegen sind diese durch elektromagnetische rücktreibende Kräfte gegeben. Nach [73]. Der von der Speicherung prinzipiell unabhängige Kühlvorgang kann z.B. mittels Laserkühlung realisiert werden (wie im nächsten Kapitel beschrieben).

hängt neben den Parametern der angelegten Spannungen und der Geometrie der Elektroden somit nur von dem  $Q/M$ -Verhältnis der gespeicherten Ionen ab. Im Sinne einer kompakteren Darstellungsweise wurde für die Beziehungen (1.16) die Frequenz  $\omega_0$ , mit Definition

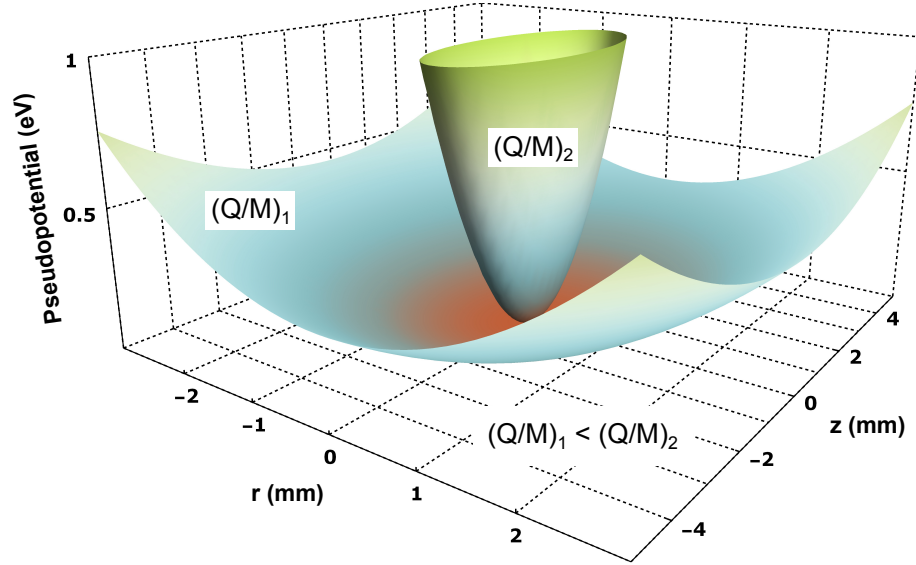
$$\omega_0 = \frac{\Omega_{RF}}{\sqrt{8}} q = \frac{QeU_{RF}}{\sqrt{2}M\Omega_{RF}r_0^2} \quad (1.17)$$

eingeführt.

Für  $V_{DC}^{rad} = 0$  sind die radialen Fallenfrequenzen entartet  $\omega_x = \omega_y = \omega_r$  und das zeitlich-gemittelte Pseudopotential  $\Psi_{Pseudo}(r, z) = \frac{1}{Qe} \frac{M}{2} (\omega_r^2 r^2 + \omega_z^2 z^2)$  besitzt Zylindersymmetrie. Durch gezieltes Anlegen einer Spannung  $V_{DC}^{rad} \neq 0$  oder durch imperfekte Elektrodengeometrie wird die Entartung aufgehoben. Typischerweise treten Unterschiede im Prozentbereich zwischen den beiden transversalen Fallenfrequenzen im Experiment auf.

Abbildung 1.7 vergleicht zwei asymmetrische Pseudopotentiale  $Q\Psi_{Pseudo}$  für zwei Ionen mit verschiedenem  $Q/m$ -Verhältnis. Durch die direkte  $Q/M$ -Abhängigkeit des Pseudopotentials  $\Psi_{Pseudo}$  (siehe Gleichung 1.16) ist der Einschluss für Ionen mit größerem  $Q/M$ -Verhältnis an sich schon stärker als für Teilchen mit kleinerem  $Q/M$ . Das Pseudopotential (im Sinne der potentiellen Energie)  $Qe\Psi_{Pseudo}$  ist für höher geladene Teilchen nochmals um den Faktor  $Q$  stärker als für z.B. einfach geladene Ionen. Beispielsweise ist der radiale Einschluss für ein  $\text{Ar}^{13+}$ -Ion um den Faktor 38 stärker als für ein  $\text{Be}^+$ -Ion bei identischen Fallenparametern.

Werden mehrere Ionen mit verschiedenen Masse-zu-Ladungs-Verhältnissen in einer



**Abbildung 1.7:** Vergleich zweier asymmetrischer Pseudopotentiale  $Qe\Psi_{Pseudo}$  für ein einzelnes  $\text{Be}^+$  ( $(Q/M)_1$ ) bzw.  $\text{Ar}^{13+}$  ( $(Q/M)_2$ ) Ion bei gleichen -für das Experiment typischen (100 mV effektive axiale Potentialtiefe, 50 V RF Spannungsamplitude)- Fallenparametern. Das ponderomotorische Pseudopotential ist für  $\text{Ar}^{13+}$  wesentlich steiler als für ein  $\text{Be}^+$  Ion. Dies legt den Schluss nahe, dass sich erstere im Inneren eines  $\text{Be}^+$ -Kristalls lokalisieren würden.

linearen Paulfalle gleichzeitig gespeichert, dann ordnet sich die Ionensorte mit größerem  $Q/M$ -Verhältnis (z.B.  $\text{Ar}^{13+}$  im Vergleich zu  $\text{Be}^+$ ) bevorzugt im Fallenzentrum an, während die Ionen mit kleinerem  $Q/M$ -Verhältnis soweit nach außen verschoben werden, bis die dort erhöhte rücktreibende Kraft der Coulomb-Abstoßung durch die innen liegenden Ionen die Waage hält.

Die Stärke des Fallenpotentials am Rand der Elektroden (z.B.  $r = r_0 = 3.5 \text{ mm}$ ,  $z = 0 \text{ mm}$ ) kann als Fallentiefe  $\Psi_0$  interpretiert werden. Typische experimentelle Werte liegen in der Größenordnung von  $Qe\Psi_0 = 1 \text{ eV}$  (für  $\text{Be}^+$ -Ionen bei Fallenparametern aus Abb. 1.7 in radialer Richtung ca. 700 meV). Um diese Barriere zu überwinden müssten die Ionen kinetische Energien besitzen, die Temperaturen von ungefähr 5400 K entsprechen.

## 1.2 Laserkühlung gespeicherter Ionen

Laserkühlung von Atomen ist gleichbedeutend mit der Kontrolle externer Zustände (Ort, Impuls) atomarer Systeme durch die mechanische Wirkung der Atom-Licht-Wechselwirkung.

Überlegungen zum Lichtdruck, den emittierte, absorbierte oder reflektierte elektromagnetische Strahlung auf Körper ausübt, gehen auf Keplers Erklärungen 1617 zum Staubschweif von Kometen und später 1873 auf Maxwells Ableitungen im Rahmen der Elektrodynamik [74] zurück.

Die mechanischen Kräfte, die Licht auf einzelne Atome und Moleküle ausübt, wurden von A. Einstein in seiner Abhandlung “Zur Quantentheorie der Strahlung“ [75] diskutiert und erstmals 1933 von R. Frisch experimentell nachgewiesen [76]. Er beobachtete die Ablenkung eines langen, dünnen Na-Atomstrahls durch den Impulsübertrag bei der Absorption und Emission von Resonanzlicht. Für das resonante Licht war er auf eine Natriumdampflampe angewiesen, so dass der Effekt so klein war, dass die Verschiebung des Atomstrahls innerhalb dessen Querschnitts lag.

A. Kastler schlug 1950 erstmals ein “lumino-frigorique“ Schema, d.h. eine Idee zum Kühlen mit optischem Licht, vor [77, 78]: Es sollte möglich sein, Salze der seltenen Erden mittels Anti-Stokes-Raman-Streuung zu kühlen. Die Grundidee bestand darin, dass das Energiedefizit bei Anti-Stokes-Streuung an Ionen, eingebettet in einen Festkörper, durch Reduktion der Energie von Gitterschwingungen ausgeglichen würde. Kastlers Grundidee wurde jedoch erst in den 1970er Jahren, durch die Verfügbarkeit neuer Technologien (Entwicklung durchstimmbarer Laser ab 1960 [79]) für die Präparation kalter atomarer Systeme als Grundlage hochpräziser Spektroskopie, erneut in Betracht gezogen.

Experimentelle Realisierungen der Laserkühlung gebundener atomarer Systeme wurden erstmals 1978 veröffentlicht. Wineland et al. berichteten über die Laserkühlung eines, in einer Penningfalle gespeicherten,  $\text{Mg}^+$ -Ionen Ensembles [80], während Neuhauser et al. die Laserkühlung von ca. 50  $\text{Ba}^+$ -Ionen in einer Paulfalle durch fotografische Fluoreszenzdetektion demonstrierten [81].

Zwei Jahre später gelang Neuhauser et al. die mikroskopische Lokalisierung eines einzelnen, im Vakuum schwebenden,  $\text{Ba}^+$ -Ions durch Laserkühlung in einer Paulfalle [82]. 1989 folgte die Präparation eines einzelnen, harmonisch gebundenen Ions im quantenmechanischen Grundzustand des Fallenpotentials mittels Seitenbandkühlung [83]. Damit war die Grundlage für Hochpräzisionsspektroskopie an einzelnen Ionen [84], für die Entwicklung immer genauerer Frequenzstandards [85], sowie für Experimente zu Quantenoptik und -information [86–91] geschaffen.

Parallel zum Kühlen geladener Ionen wurden Techniken zum Kühlen und Speichern neutraler Atome mittels Lasern entwickelt [92–95]. In diesem Zusammenhang wurden drei Nobelpreise [96–103], u.a. für die Erzeugung von Bose-Einstein-Kondensaten vergeben. Da in der vorliegenden Arbeit ausschließlich geladene Teilchen in kalten Zuständen präpariert wurden, wird auf dieses weite und interessante Feld nicht näher eingegangen.

Die in den letzten vier Jahrzehnten realisierten Arbeiten und theoretischen Grundlagen zum Laserkühlen gespeicherter Ionen wurden in mehreren ausgezeichneten

Review-Artikeln und Büchern betrachtet: [73, 104–108]. Die folgenden Überlegungen zum Laserkühlen geladener Teilchen in einer Paulfalle stützen sich daher in zusammenfassender Weise auf die Referenzen [73, 104–108].

Hauptsächliches Ziel des Laserkühlens gespeicherter Ionen ist die Reduzierung der kinetischen Energie der Ionen, nachdem sie in die Falle geladen wurden. Hier können sie anfangs kinetische Energien besitzen, die mehreren 1000 K entsprechen (vergleiche Kapitel 1.1.3). Idealerweise können die Ionen bis in den Grundzustand des harmonischen Oszillatorpotentials herunter gekühlt werden.

Effizientes Kühlen eines Ions, ausgehend von den hohen Starttemperaturen nach dem Laden, bedingt die Verwendung dipolerlaubter, schneller Übergänge, um eine maximale Anzahl an Streueignissen in kurzer Zeit zu ermöglichen. Die meisten Paulfallenexperimente mit gekühlten Ionen starten daher mit einem Doppler-Kühlzyklus im Bereich unaufgelöster Seitenbänder [107], da hierfür die Lebensdauer des angeregten Zustandes deutlich kürzer als die Periodendauer der harmonischen Ionenbewegung ist. Wie im nächsten Kapitel diskutiert, verläuft die Dopplerkühlung eines gebunden Ions im Bereich unaufgelöster Seitenbänder analog zur Dopplerkühlung freier Atome.

Um Ionen mit hoher Wahrscheinlichkeit in den mechanischen Grundzustand zu kühlen folgt anschließend ein weiterer Kühlzyklus, typischerweise mit einem schmalbandigeren, langsameren Übergang im Bereich aufgelöster Seitenbänder.

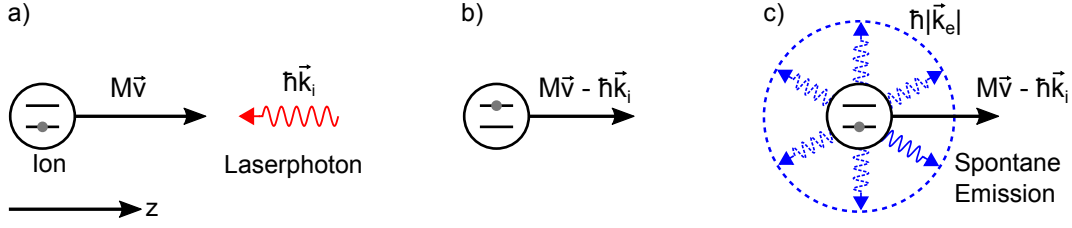
### 1.2.1 Dopplerkühlen

Die Dopplerkühlung von Atomen basiert - neben den physikalischen Prinzipien der Energie- und Impulserhaltung, sowie der Tatsache, dass Photonen einen Impuls  $\vec{p} = \hbar\vec{k}$  besitzen - auf der Bewegungszustands-selektiven Anregung atomarer Übergänge. Dabei kommt die Geschwindigkeits-Selektivität der Anregung durch die Kombination aus Doppler-Effekt und endlicher Linienbreite  $\Gamma$  von Übergängen zustande.

#### Kühlung quasi-freier Ionen

Die Grundidee der Laserkühlung freier Atome (äquivalent zu quasi-freien Ionen im weak-binding limit, wie später gezeigt) ist in Abbildung 1.8, für die Kühlung der Bewegungsrichtung entlang der  $z$ -Achse, skizziert. Hierbei wird vereinfachend angenommen, dass es sich bei dem Atom um ein Zwei-Niveau-System handelt. Das Atom mit Masse  $M$  und Geschwindigkeit  $\vec{v}$  bewege sich anti-parallel zu den einfallenden Laserphotonen, die den Impuls  $\hbar\vec{k}_i$  besitzen. Die monochromatische Frequenz des Laserlichts  $\omega_l$  sei dabei um  $\Delta = (\omega_l - \omega_a)$  mit  $\omega_l < \omega_a$ , in Bezug auf die Resonanzfrequenz  $\omega_a$  des ruhenden Atoms, rot verstimmt.

Durch die Relativbewegung zwischen Photonenquelle und Atom kommt es zum Doppler-Effekt bzgl. der Laser- oder Resonanzfrequenz (je nach Bezugssystem). All-



**Abbildung 1.8:** Vereinfachte Prinzipskizze des Doppler-Laserkühlens quasi-freier Ionen im Impulsbild des weak-binding limits.

a) Ein Ion bewege sich kollinear zum einfallenden Kühllaserstrahl, der im Vergleich zur Übergangsfrequenz des ruhenden Zwei-Niveau-Systems rot verstimmt ist. Im bewegten Bezugssystem des Ions erscheint das Laserlicht durch den Doppler-Effekt blau verschoben und ein Photon kann absorbiert werden.

b) Durch Absorption eines Laserphotons erfährt das Ion aufgrund der Impulserhaltung einen Rückstoß, wodurch sich seine Geschwindigkeit verringert.

c) Über mehrere Absorptions-Emissions-Zyklen gemittelt erfährt das Ion keinen Netto-Impulsübertrag durch die spontane Photonenemission, da die Photonen isotrop ausgesandt werden. Die spontan emittierten Photonen besitzen im Laborsystem, im Vergleich zu den Laserphotonen, im Mittel eine höhere Frequenz, so dass das Ion Energie an das Photonenfeld abgibt. Die Bewegung von Atomen kann, bei schnellen Übergängen, so mit bis zu  $10^5 g$  ( $g$  – Erdbeschleunigung) verlangsamt werden.

gemein gilt in einer eindimensionalen Betrachtung (sonst kann die Projektion von  $\vec{v}$  auf  $\vec{k}$  betrachtet werden): In einem mit dem Atom mit bewegten Bezugssystem ist die Laserfrequenz wie folgt Doppler verschoben [109]:

$$\omega'_l = \omega_l \left( \frac{1 \pm v/c}{1 \mp v/c} \right)^{1/2}, \quad (1.18)$$

dabei stehen die jeweils oberen Vorzeichen für den Fall, dass sich Atom und Laserphotonen aufeinander zu bewegen, während die jeweils unteren Vorzeichen für eine parallele Bewegung stehen.

Bei typischen mittleren Geschwindigkeiten atomarer Gase bei Raumtemperatur von ca.  $1000 \text{ ms}^{-1}$  ist eine nicht-relativistische Näherung angebracht und Gleichung (1.18) kann um  $v = 0$  entwickelt und Terme höherer Ordnung vernachlässigt werden:

$$\omega'_l - \omega_l = \pm \frac{v}{c} \omega_l + \frac{1}{2} \frac{v^2}{c^2} \omega_l + \dots \quad (1.19)$$

$$\approx \pm kv + \frac{1}{2} \frac{v^2}{c^2} \omega_l. \quad (1.20)$$

Der erste Term in obiger Gleichung (1.20) wird Doppler-Effekt erster Ordnung, der zweite Term Doppler-Effekt zweiter Ordnung genannt. Für die folgenden Betrachtungen vernachlässigen wir den Doppler-Effekt zweiter Ordnung, da er nicht von der relativen Bewegungsrichtung abhängt und daher nicht zur Kühlung beiträgt. Für das effektive Detuning  $\delta_{eff}$ , das sich aus der Doppler-Verschiebung und der Laserverstimmung bzgl. der Resonanzfrequenz eines ruhenden Atoms  $\Delta$  zusammensetzt, gilt



folglich:

$$\delta_{eff} = \Delta - \vec{k}\vec{v}. \quad (1.21)$$

Bewegt sich das Zwei-Niveau-System auf die Laserphotonen zu ( $\vec{k}\vec{v} < 0$ ), so kann die Laserfrequenz für das Atom in Resonanz geschoben werden. Bei einer Bewegung in die gleiche Richtung wie die Laserphotonen ( $\vec{k}\vec{v} > 0$ ) erscheint die Laserfrequenz dem Atom dagegen noch weiter rot verstimmt. Die Absorption eines Photons ist also wesentlich wahrscheinlicher, wenn die Bewegungsrichtungen von Laserphotonen und Atom anti-parallel sind.

Die Absorption eines Laserphotons überführt das Atom in den angeregten Zustand und überträgt dabei den Impuls  $\vec{p} = \hbar\vec{k}$  in Richtung seines Wellenvektors  $\vec{k}$  auf das Atom. Für die Situation aus Abbildung 1.8 bedeutet dies, dass sich das Ion verlangsamt.

Für die anschließend ausgesandten Photonen der spontanen Emission gibt es keine Vorzugsrichtung, da das Atom kein "Gedächtnis" bzgl. der ursprünglichen Laserbreitungsrichtung besitzt. Über mehrere Absorptions-Emissions-Zyklen gemittelt erhält das Atom folglich keinen Netto-Impulsübertrag durch die Photonenemission, wie in Abb. 1.8 c) skizziert. Allerdings ergibt sich durch die statistische Natur der Absorptions- und Emissionsvorgänge ein Random Walk im Impulsraum, der letztlich mit einer Heizrate gleichgesetzt werden kann und daher die minimal erreichbare Doppler-Kühltemperatur mitbestimmt.

Bei einer Temperatur von 300 K besitzt ein Ensemble aus  $\text{Be}^+$ -Atomen eine mittlere Geschwindigkeit von  $\approx 840 \text{ m s}^{-1}$ , die um wenigstens zwei Größenordnungen durch Laserkühlung verringert werden soll. Nach Abbildung 1.8 erhält das Atom zusammenfassend im Mittel einen Impulsübertrag  $\Delta p = \hbar k$  und seine Geschwindigkeit ändert sich um die Rückstoßgeschwindigkeit  $v_r$  mit

$$v_r = \frac{\hbar k}{M} \approx 14 \text{ cm s}^{-1} \text{ für } \text{Be}^+ (\lambda = 313 \text{ nm}). \quad (1.22)$$

Somit müssen in der Größenordnung von  $10^4$  Absorptions-Emissions-Zyklen stattfinden, um atomare Systeme, ausgehend von Raumtemperatur, in den mK-Bereich herunter zu kühlen.

Jedes einzelne Photonenereignis ruft eine Doppler-Verschiebung der Größe

$$v_r k = \frac{\hbar k^2}{M} \approx 2.8 \text{ MHz für } \text{Be}^+ (\lambda = 313 \text{ nm}) \quad (1.23)$$

hervor. Verglichen mit der Linienbreite  $\Gamma/2\pi = 19.4 \text{ MHz}$  bedeutet dies, dass nur ca. 44 Absorptions-Emissions-Zyklen möglich wären, bevor die Laserfrequenz nachverstimmt werden müsste, um einen kontinuierlichen Impulsübertrag von Photonen auf das Atom zu gewährleisten.

Beim Herunterkühlen neutraler Atome verstimmt man daher entweder adiabatisch die Laserfrequenz mit abnehmender atomarer Geschwindigkeit [95] oder verändert kontinuierlich die Resonanzfrequenz des atomaren Übergangs durch einen Zeeman-Slower [92]. Des weiteren werden für neutrale Atome je zwei gegenläufige Laserstrahlen verwendet, um die Geschwindigkeitsverteilung in einer Raumrichtung

zu komprimieren [95].

### Kühlung harmonisch gebundener Ionen (1D)

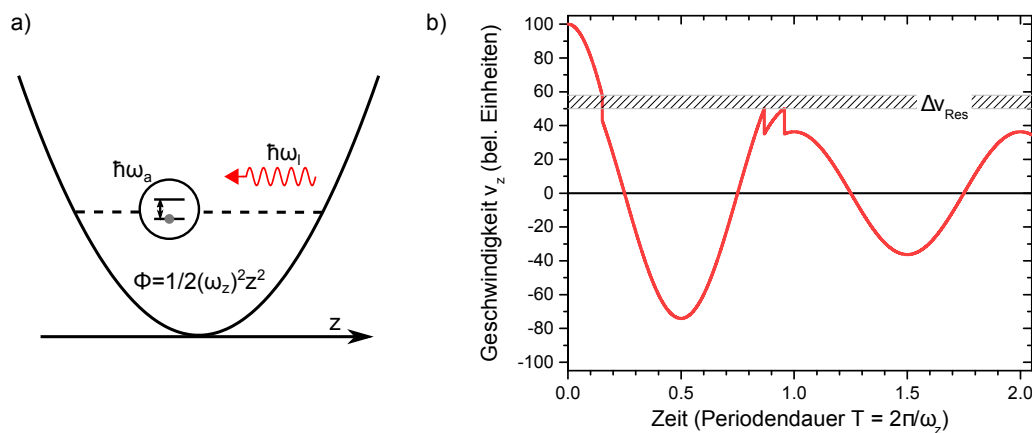
In den Experimenten der vorliegenden Arbeit werden in einer Paulfalle gespeicherte Ionen lasergekühlt. Es soll also die Amplitude der oszillatorischen Makrobewegung der Ionen verringert werden. Wie Abbildung 1.9 verdeutlicht ist hier das Vorhandensein eines einzelnen Laserstrahls pro Raumrichtung ausreichend.

Für die folgenden Betrachtungen vernachlässigen wir zunächst die Mikrobewegung und betrachten die Ionenbewegung in einer Dimension, z.B. entlang der Symmetrieachse einer linearen Paulfalle im harmonischen Potential  $\Phi = 1/2\omega_z^2 z^2$  (siehe Abb. 1.9 a)). Unter semiklassischer Betrachtungsweise (Bewegung des Ions klassisch, Zwei-Niveau-System des Ions quantenmechanisch beschrieben) folgt die Geschwindigkeit des Ions damit der Form:

$$v_z(t) = v_{max} \cos(\omega_z t). \quad (1.24)$$

Das Ion kann zu jedem Zeitpunkt angeregt werden, in dem die Dopplerverschiebung  $kv_z$  das Laserdetuning  $\Delta$  im Rahmen der Linienbreite des Überganges kompensiert, gefolgt von der spontanen Emission eines Photons.

Wird die Laserverstimmung wie beim Dopplerkühlen freier Atome so gewählt, dass die Photonenabsorption wahrscheinlicher ist, wenn sich das Ion auf die Photonenquelle zu- statt wegbewegt ( $\Delta < 0$ ), so verringert sich die Ionengeschwindigkeit bei



**Abbildung 1.9:** Eindimensionale Prinzip-Betrachtung zur semiklassischen Theorie der Laserkühlung gespeicherter Ionen nach Stenholm [105].

a) Das atomare Zwei-Niveau-System ist im axialen (vernachlässigbare Mikrobewegung) harmonischen Potential  $\Phi = 1/2\omega_z^2 z^2$  einer linearen Paulfalle gebunden.

b) Das Ion führt harmonische Oszillationen entlang der Fallenachse aus, so dass es eine Reihe von Dopplerverschiebungen annimmt. Beim Durchlaufen des Geschwindigkeitsintervalls  $\Delta v_{Res}$  wird das, gegenüber der Übergangsfrequenz des ruhendes Atoms, rot verstimmte Laserlicht für das Ion aufgrund des Doppler-Effektes jedes Mal in Resonanz geschoben. Dann kann es ein Photon absorbieren und dadurch gekühlt werden. Heizprozesse und die detaillierte Form des geschwindigkeitsabhängigen Absorptionsquerschnitts sind in der Darstellung nicht inkludiert.

jedem Absorptions-Emissions-Zyklus im Mittel um  $v_r$ .

Ist die Oszillationsperiode im Fallenpotential langsam, im Vergleich zur Lebensdauer des angeregten Zustandes, ( $\omega_z \ll \Gamma$ ) so findet ein Anregungszyklus bei quasi konstanter Geschwindigkeit (und konstantem Ort) statt. Die Geschwindigkeit eines Ions unterliegt dann einer gedämpften Oszillation, wie in Abb. 1.9 vereinfacht illustriert.

Während der Oszillationsperiode  $T_z = 2\pi/\omega_z$  nimmt das Ion kontinuierlich die Geschwindigkeiten im Bereich  $-v_{max} \dots v_{max}$  an. Durchläuft das Ion hierbei das Resonanzband  $\Delta v_{Res}$ , so verringert sich seine Geschwindigkeit um ein oder mehrere Rückstoßgeschwindigkeiten.

Während einer Oszillationsperiode  $T_z$  tastet das Ion kontinuierlich alle möglichen Dopplerverschiebungen mit einer Rate der Größenordnung  $v_{max}k\omega_z$  ab [105]. Damit beträgt die Zeit, um einen Wechselwirkungsbereich der Größe  $\Gamma$  zu durchlaufen ungefähr  $\Gamma/(v_{max}k\omega_z)$ . Für  $\omega_z \ll \Gamma$  ist diese Zeit (nach anfänglichem, kurzem Kühlprozess nach dem Laden) wesentlich kürzer als die Lebensdauer eines angeregten, schnellen dipolerlaubten Übergangs ( $\tau \approx 10$  ns). Bei dem Fallenexperiment der vorliegenden Arbeit ist z.B. die axiale Fallenfrequenz für ein  $\text{Be}^+$ -Ion rund zwei Größenordnungen kleiner als die Linienbreite des Kühlübergangs. In diesem Fall kann das Ion für den Kühlprozess als quasifrei angesehen werden. Damit kann, wie für freie Atome, der mittlere Strahlungsdruck durch eine geschwindigkeitsabhängige, kontinuierliche Kraft beschrieben werden.

Die Rate, mit der die Absorptions-Emissions-Zyklen, welche das Ion kühlen, stattfinden, ist durch die Linienbreite  $\Gamma$  des Übergangs multipliziert mit der Besetzungswahrscheinlichkeit  $\rho_{ee} = \langle e|\hat{\rho}|e \rangle$  des angeregten Niveaus gegeben. Daraus folgt direkt die, durch den kontinuierlichen Photonenübertrag hervorgerufene, mittlere Kraft  $F_a$  auf ein Ion [107]:

$$\left(\frac{dp}{dt}\right)_a \approx F_a = \hbar k \Gamma \rho_{ee}, \quad (1.25)$$

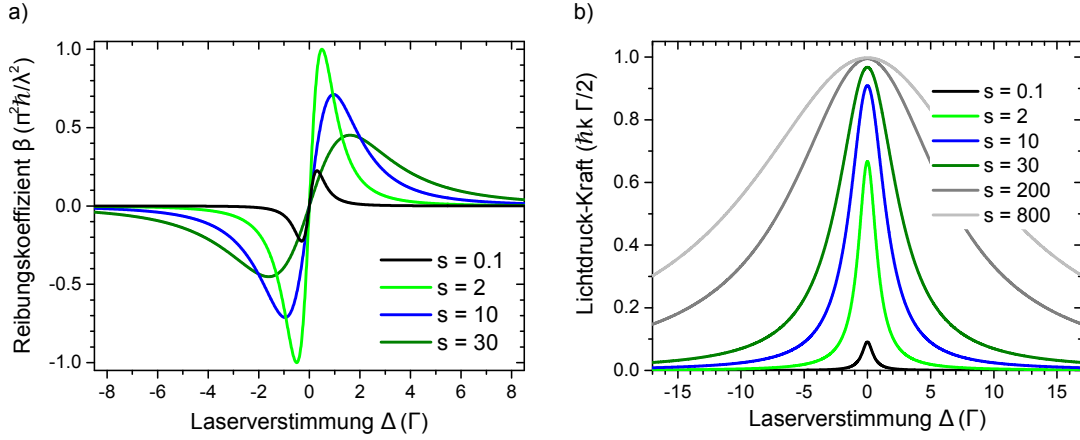
wobei die Besetzungswahrscheinlichkeit des angeregten Zustandes nach [110] durch

$$\rho_{ee} = \frac{s/2}{(1+s) + (2\delta_{eff}/\Gamma)^2} \quad (1.26)$$

gegeben ist. Das effektive Laserdetuning  $\delta_{eff}$  ist in Gleichung (1.21) definiert und  $s = I/I_S = 2\Omega^2/\Gamma^2$  steht für den Sättigungsparameter, der als das Verhältnis von Anregungs- zu Relaxationsrate des Übergangs gegeben ist.  $\Omega$  bezeichnet die Rabi-Frequenz des Übergangs. Der Sättigungsparameter kann äquivalent als Verhältnis von Laserintensität zu Sättigungsintensität  $I_S$  des atomaren Übergangs geschrieben werden. Für einen E1-Übergang im Zwei-Niveau-System kann die Sättigungsintensität damit wie folgt berechnet werden [111, 112]:

$$I_S = \frac{\pi}{3} \frac{\hbar c}{\lambda^3} \Gamma. \quad (1.27)$$

Gegen Ende des Doppler-Kühlprozesses, wenn die Dopplerverbreiterung kleiner als



**Abbildung 1.10:** a) Normierter Reibungskoeffizient  $\beta$  für verschiedene Sättigungsparameter  $s$ .  $\beta$  ist für optische Übergänge klein:  $\beta_{max} = \pi^2 \hbar / \lambda^2$  für  $s = 2$  und  $\Delta = \Gamma/2$ . So erhält man z.B. für den  $^2S_{1/2}(F = 2) \leftrightarrow ^2P_{3/2}(F = 3)$  Kühlübergang des  $\text{Be}^+$ -Ions bei  $\lambda = 313 \text{ nm}$  einen Wert von  $\beta_{max} \approx 1 \times 10^{-20} \text{ kg s}^{-1}$ .

b) Normierte, über mehrere Absorptions-Emissions-Zyklen gemittelte, Lichtdruck-Kraft  $F_0$  für ein ruhendes Ion, die, bei Verwendung eines einzelnen Kühlaserstrahls entlang der Fallachse, das Ion leicht aus dem Fallenzentrum herausschiebt. Der Maximalwert von  $F_0$  beträgt für den Kühlübergang des  $\text{Be}^+$ -Ions  $1 \times 10^{-19} \text{ N} \hat{=} 108 \text{ zN}$ .  $F_0$  ist für verschiedene Sättigungsparameter  $s$  dargestellt, um die Entstehung der Sättigungsverbreiterung des Übergangs für  $s \gg 1$  zu illustrieren.

die natürliche Linienbreite  $\Gamma$  wird, kann man die Kraft  $F_a$  aus Gleichung (1.25), mittels Taylorreihenentwicklung, um  $v = 0$  linearisieren und erhält:

$$F_a \approx F_0 + \beta v. \quad (1.28)$$

Dabei handelt es sich bei

$$F_0 = \hbar k \frac{\Gamma}{2} \frac{s}{(1 + s) + (2\Delta/\Gamma)^2} \quad (1.29)$$

um die mittlere, konstante Lichtdruck-Kraft, die das Ion, bei Verwendung eines einzelnen Laserstrahls, aus dem Fallenzentrum heraus und soweit gegen das Fallpotential schiebt, bis sich eine neue Gleichgewichtslage ergibt.

Der zweite Term aus Gleichung (1.28) hat die Form einer Stokes'schen Reibungskraft. Hierbei wird der sogenannte Reibungskoeffizient

$$\beta = 4\hbar k^2 \frac{s \Delta/\Gamma}{[(1 + s) + (2\Delta/\Gamma)^2]^2} \quad (1.30)$$

der Laserkühlkraft zum Reibungswiderstand für  $\Delta < 0$ . In diesem Fall ergibt sich die Kühlrate  $\dot{E}_{cool}$ , gemittelt über viele Oszillationsperioden der Makrobewegung des Ions, zu

$$\dot{E}_{cool} = \langle F_a v \rangle = F_0 \langle v \rangle + \beta \langle v^2 \rangle = \beta \langle v^2 \rangle = \frac{2\beta}{m} \langle E \rangle, \quad (1.31)$$

da für ein harmonisch oszillierendes Ion  $\langle v \rangle = 0$  gilt. Der Verlauf des Reibungskoeffizienten in Abhängigkeit der Laserverstimmung ist in Abbildung 1.10 a) für verschiedene Sättigungsparameter gezeigt. Für das Parameterpaar  $s = 2$  und  $\Delta = -\Gamma/2$  erreicht die Kühlrate aus Gleichung (1.31) ihren maximal möglichen Wert mit  $\beta_{max} = \hbar k^2/4$ .

### Doppler-Kühllimit

Die Temperatur des Ions kann als Zeitmittel über  $3/2k_B T = \langle E \rangle$  definiert werden [113]. Damit erhält man als Kühlrate  $\dot{T}_{cool}$  der Iontemperatur - bei Laserkühlung des gespeicherten Ions mit einem einzelnen Laserstrahl - die Beziehung  $\dot{T}_{cool} = (2\beta/3M)T$ .

Da es sich bei Beryllium um ein leichtes Element handelt, können unter optimalen Bedingungen, relativ hohe Kühlraten erreicht werden. Um z.B. ein einzelnes  $\text{Be}^+$ -Ion von  $T_i = 10 \text{ mK}$  auf  $T_f = 5 \text{ mK}$  auf dem  $^2S_{1/2}(F=2) \longleftrightarrow ^2P_{3/2}(F=3)$  Kühlübergang mit  $\Delta = -\Gamma/2$  herunter zu kühlen würde eine Zeit  $t_{cool} = \ln(T_f/T_i)/(2\beta/3M)$  von  $2 \mu\text{s}$  vergehen. Aus Abbildung 1.10 a) ist aber auch zu erkennen, dass die Kühlzeiten unter nicht ganz optimalen Bedingungen ( $I \gg I_S$  oder  $I \ll I_S$  oder starker Laserverstimmung) schnell um mehrere Größenordnungen ansteigen können.

Abbildung 1.10 b) zeigt den Verlauf der Lichtdruckkraft  $F_0(\Delta)$  auf ein einzelnes, ruhendes Ion für verschiedene Sättigungsparameter. Die maximale Lichtdruckkraft wird für  $\Delta = 0$  erreicht und nimmt für größer werdende Laserintensitäten zu, bis Sättigung für  $I \gg I_S$  eintritt.

Das Sättigungsverhalten kommt dadurch zustande, dass die Rate des Impulsübertrags von den Laserphotonen auf das Ion durch die Rate der spontanen Emission limitiert wird. Denn für die Besetzungswahrscheinlichkeit (siehe Gleichung (1.26)) des angeregten Zustandes des Kühlübergangs gilt:  $\rho_{ee}(\Delta = 0) = s/(2(1+s)) \rightarrow 50\%$  für  $I_s \rightarrow \infty$ . Die maximale Lichtdruckkraft für ein einzelnes  $\text{Be}^+$ -Ion liegt in der Größenordnung von  $108 \text{ zN}$ . Für  $I \gg I_s$  setzt Sättigungsverbreiterung des Übergangs ein, so dass sich eine effektiv verbreiterte Linienbreite

$$\Gamma_{eff} = \Gamma\sqrt{1+s} \quad (1.32)$$

ergibt, wie in Abb. 1.10 b) verdeutlicht.

Nun bleibt noch die Frage nach der minimal, mittels Doppler-Kühlung, erreichbaren Iontemperatur  $T_{min}$  zu klären. Nach Gleichung (1.31) hätte das Ion final eine kinetischen Energie von Null, wenn man nicht die, mit der statistischen Natur von Photonenemissions und -absorptionsvorgängen verbundenen, Heizmechanismen in Betracht zieht. Zusätzlich würde das Ion selbst bei  $v = 0$  immer noch Anregungszyklen mit einer Rate von  $\Gamma\rho_{ee}$  durchlaufen, was zum Recoil-Limit der Temperatur führt.

Wie zu Beginn dieses Kapitels diskutiert und in Abb. 1.8 c) verdeutlicht, ist der mittlere Impulsübertrag durch die isotrope, spontane Photonenemission gleich Null  $\langle \Delta \vec{p} \rangle = 0$ . Aufgrund der statistischen Natur spontaner Photonenemission kommt es jedoch, analog zur Brown'schen Bewegung [114, 115], zum Diffusionsprozess im

Impulsraum und damit zu  $\langle \Delta p^2 \rangle \neq 0$ . Dies führt zu einer fundamentalen Grenze der minimal erreichbaren Temperatur, die oberhalb des Recoil-Limits liegt.

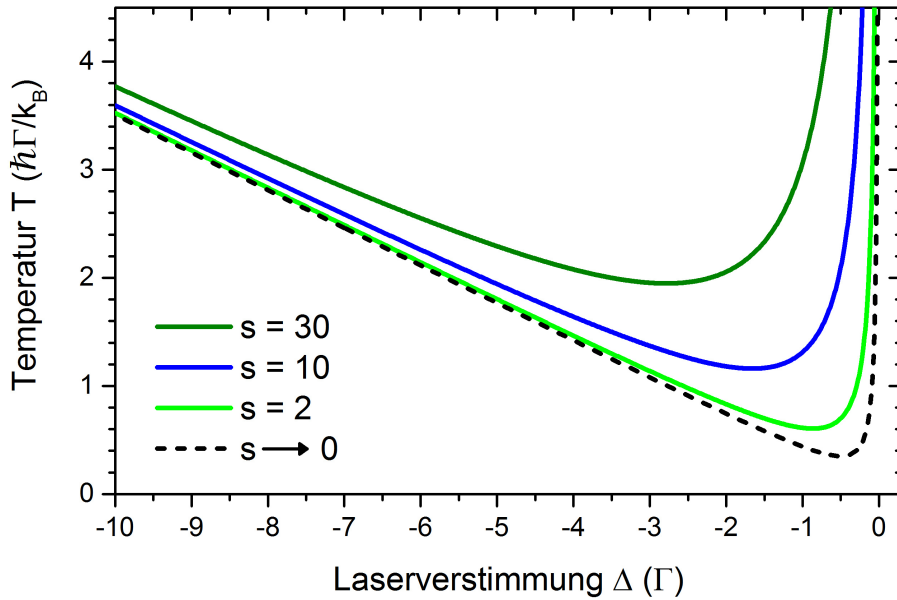
Das Ion vollführt einen Random-Walk im Impulsraum mit Schrittweite  $\bar{k}$ , während die Schrittfrequenz der Photonenstreure  $\Gamma_{\rho_{ee}}$  entspricht. Damit kann  $\langle \Delta p^2 \rangle$  nach der Theorie zu Random-Walk Prozessen mittels des zugehörigen Diffusionskoeffizienten  $D = \xi \Gamma_{\rho_{ee}} (\hbar k)^2$  als  $\langle \Delta p^2 \rangle = Dt$  beschrieben werden. Das zweite Moment der Verteilung des statistischen Parameters (hier: Impulsübertrag) ist folglich proportional zur Anzahl  $N = \Gamma_{\rho_{ee}} t$  der stattfindenden Schritte [114, 116].

Analoge Überlegungen gelten für die statistische Natur des Absorptionsvorgangs, nur das hier nur eine Richtung für die Diffusion in Frage kommt. Daher wurde der Diffusionskoeffizient für die spontane Emission bereits mit dem geometrischen Faktor  $\xi$  gewichtet ( $\xi = 2/5$  für elektrische Dipolübergänge [105, 107]).

Bei Annäherung an das Doppler-Kühllimit kann man davon ausgehen, dass  $v$  relativ kleine Werte, in der Nähe von Null, annehmen wird. Damit erhält man für die Heizrate  $\dot{E}_{heat}$  durch die Impulsdiffusion:

$$\begin{aligned} \dot{E}_{heat} &= \frac{1}{2M} \frac{d}{dt} \langle p^2 \rangle = \dot{E}_{em} + \dot{E}_{abs} = \dot{E}_{abs}(1 + \xi) \\ &\approx \frac{1}{2M} (\hbar k)^2 \Gamma_{\rho_{ee}}(v=0)(1 + \xi). \end{aligned} \quad (1.33)$$

Wenn Heiz- und Kühlprozesse mit der gleichen Rate ablaufen, so kann eine Gleichgewichtstemperatur erreicht werden. Zu Bestimmung von  $T_{min}$  müssen also Gleich-



**Abbildung 1.11:** Am Doppler-Kühllimit erreichbare Temperatur, in Einheiten von  $\hbar\Gamma/(k_B)$ , in Abhängigkeit der Laserverstimmung  $\Delta$ , in Einheiten von  $\Gamma$ , für verschiedene Sättigungsparameter  $s$ . Die durch Doppler-Kühlung im weak-binding limit tiefste erreichbare Temperatur beträgt für den  $^2S_{1/2}(F=2) \longleftrightarrow ^2P_{3/2}(F=3)$  Übergang mit  $s \rightarrow 0$  im  $\text{Be}^+$ -Ion  $T_{min} \approx 0.32$  mK ( $\hbar\Gamma/(k_B) \approx 0.93$  mK). Sie wird bei einer Laserverstimmung von  $\Delta = -\Gamma/2$  mit  $\Gamma/2\pi = 19.4$  MHz erreicht.

chungen (1.31) und (1.33) gleichgesetzt werden:

$$M \langle v^2 \rangle = k_B T = (1 + \xi) \frac{\hbar \Gamma}{8} \left[ (1 + s) \frac{\Gamma}{2|\Delta|} + \frac{2|\Delta|}{\Gamma} \right]. \quad (1.34)$$

Für dieses einfache (1-dim.) Modell der Doppler-Laserkühlung erhält man als minimal mögliche Temperatur den Ausdruck

$$T_{min} = (1 + \xi) \frac{\hbar \Gamma \sqrt{1 + s}}{4k_B}, \quad (1.35)$$

für eine Laserverstimmung von  $\Delta = -\Gamma \sqrt{1 + s}/2$ .

Abbildung 1.11 vergleicht den Verlauf am Doppler-Kühllimit erreichbarer Temperaturen in Abhängigkeit der Laserverstimmung für verschiedene Sättigungsparameter. Die durch Doppler-Kühlung im weak-binding limit tiefste erreichbare Temperatur beträgt für den  $^2S_{1/2}(F = 2) \longleftrightarrow ^2P_{3/2}(F = 3)$  Übergang mit  $s \rightarrow 0$  im  $\text{Be}^+$ -Ion  $T_{min} \approx 0.32 \text{ mK}$ .

Auch wenn die Verwendung kleiner Laserintensitäten,  $s \rightarrow 0$  zur minimal möglichen Temperatur führt, so ist es aus experimenteller Sicht trotzdem meist vorteilhafter bei höheren Sättigungsintensitäten zu arbeiten, da z.B. für  $s = 2$  maximale Kühlraten erreicht werden können (vergleiche Abb. 1.10 a)). In den Experimenten dieser Arbeit wurde zur schnelleren Kühlung (und damit auch Rückkühlung bei diskreten Heizprozessen) bei Sättigungsparametern zwischen  $s = 2$  und  $s = 30$  gearbeitet.

### Reale Kühlbedingungen

In der Regel liegt die allein mittels Doppler-Laserkühlung im weak-binding limit erreichbare minimale Ionentemperatur, aufgrund weiterer Heizprozesse technischer Natur, oberhalb des durch Gleichung (1.35) gegebene Wertes. Frequenz- und Intensitätsrauschen des Kühllasers, RF-Heating, hervorgerufen durch den Energietransfer von der getriebenen regulären Mikrobewegung zur statistischen Makrobewegung in einer nicht-idealen Paulfalle, das Vorhandensein von Excess Mikrobewegung oder die Kopplung unter mehreren Ionen in der Falle können allesamt zu zusätzlichen Heizprozessen führen.

Im Gegensatz zu freien Atomen können in einer Paulfalle gespeicherte Ionen mittels eines einzigen Kühllaserstrahl gekühlt werden [117]. Für ein einzelnes Ion sollte dafür der Kühllaserstrahl nicht exakt entlang der Symmetrieachse der Falle verlaufen, sondern je einen Winkel zu den  $(x, y, z)$ -Achsen (definiert in Abb. 1.2) haben, so dass alle drei Raumrichtungen effizient gekühlt werden können. Sollen mehrere Ionen gleichzeitig gekühlt werden, so ist selbst ein einzelner, entlang der Fallenachse ausgerichteter Kühllaserstrahl ausreichend. Dann wird zwar nur eine Bewegungsrichtung direkt gekühlt, diese koppelt aber durch die Coulomb-Interaktion mit den übrigen Ionen an die anderen Bewegungsrichtungen, so dass deren kinetische

Energie ebenfalls reduziert wird.

Die Grundlage der vorangegangenen Überlegungen zur Laserkühlung harmonisch gebundener Ionen basiert auf der Modellierung selbiger als Zwei-Niveau-System mit hoher Streurate. Reale Ionen sind jedoch keine reinen Zwei-Niveau-Systeme.

Diese Annahme ist in der Realität nur für eine relativ kleine Auswahl von atomaren Systemen näherungsweise gerechtfertigt. So sollte das Ion idealerweise einen geschlossenen Ein-Elektronen-Übergang von einem kurzlebigen ( $\approx 10$  ns) angeregten Zustand aus besitzen, der bei einer Wellenlänge liegt, die mit Lasern erreichbar ist. Kann dieser angeregte Zustand in weitere metastabile Zustände zerfallen, so muss mittels weiterer Laser dafür Sorge getragen werden, dass das Elektron wieder in den Kühlzyklus zurück gepumpt werden kann (Einsatz von Repumper Lasern). Um die Anzahl der benötigten Kühllaser zu minimieren wählt man daher typischerweise Kühltionen die eine geringe Zahl von relevanten Energieniveaus aufzeigen.

Die oben genannten Bedingungen an das Energieniveauschema der Ionen schließt z.B. die meisten Molekülionen [118,119] und hochgeladenen Ionen [120] vom direkten Laserkühlen aus. Um hier nicht nur wenige Ausnahmen, sondern alle spektroskopisch interessanten Ionen kühlen zu können, wendet man für diese Klasse von Ionen das sympathetische Kühlen an, wie in Kapitel 1.4 erläutert wird.

Das Kühltion (wird direkt lasergekühlt) beim sympathetischen Kühlen sollte dem Ideal des Zwei-Niveau-Systems auf möglichst einfache Weise nahe kommen. Hier bieten sich daher, neben  $\text{Hg}^+$  und  $\text{Yb}^+$ , vor allem Ionen aus der zweiten Hauptgruppe des Periodensystems (Erdalkalimetalle), von  $\text{Be}^+$  bis  $\text{Ba}^+$ , an, die bereits seit drei Jahrzehnten routinemäßig in atomphysikalischen Laboratorien im Einsatz sind [80,81,84,121–124]. Diese Ionen besitzen alle eine Alkalimetall-artige Elektronenkonfiguration und damit ein relativ einfaches Niveauschema. Für das sympathetische Kühlen hochgeladener Ionen ist Beryllium als Kühltion besonders geeignet (vergleiche Kapitel 1.4) und ist daher bei den Experimenten der vorliegenden Arbeit im Einsatz. Die für das Doppler-Laserkühlen relevante Energieniveaustuktur des  $\text{Be}^+$ -Ions wird in Kapitel 1.5.3 betrachtet.

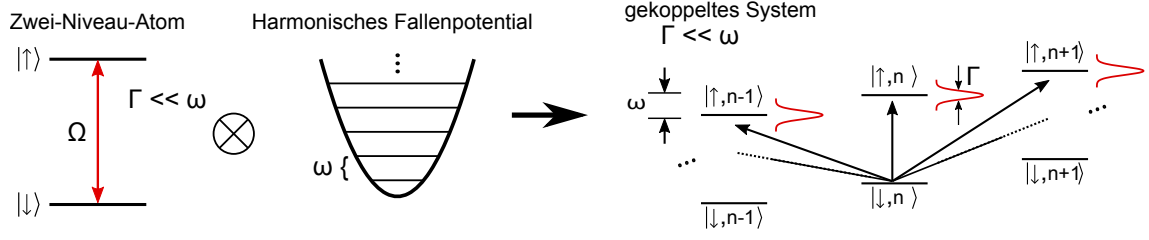
### 1.2.2 Seitenbandkühlen - Optisches Pumpen kinetischer Energieniveaus

Beim direkten Seitenbandkühlen handelt es sich um eine Kühlmethode, die es erlaubt harmonisch gebundene Ionen wesentlich unter das Doppler-Kühllimit, bis zum Grundzustand der Bewegung, zu kühlen. Ausführliche Darstellungen findet man in [73,105,125,126], an denen sich folgende Zusammenfassung orientiert.

Für ein atomares Zwei-Niveau-System, dass in einem harmonischen Fallenpotential mit Schwingungsfrequenz  $\omega$  gebunden ist, werden dessen elektronischem Niveauschema die Energiezustände der Bewegung in dem harmonischen Potential überlagert, wie in Abbildung 1.12 schematisch illustriert wird. Dadurch entstehen im Anregungs- und Emissionsspektrum des gebundenen Zwei-Niveau-Systems äquidistante Seitenbänder, die energetisch um  $\omega$  voneinander getrennt sind.

Im Bereich schwacher Bindung, d.h. wenn die Linienbreite des angeregten Nive-





**Abbildung 1.12:** Schematische Illustration des Zustandekommens der Zustände eines atomaren Zwei-Niveau-Systems, welches im harmonischen Potential, mit  $\omega \gg \Gamma$ , gebunden ist. In diesem Fall starker Bindung besteht das Spektrum des Systems aus äquidistanten Linien. Rechts ist sind mögliche Anregungen des Systems (auf dem Carrier  $\Delta n = 0$ , dem roten  $\Delta n = -1$  oder blauen  $\Delta n = +1$  Seitenband) skizziert. Für das direkte Seitenbandkühlen, im skizzierten Bereich aufgelöster Seitenbänder, wird der Laser auf das rote Seitenband verstimmt:  $\Delta = -\omega$ .

aus breiter als der Abstand der Energieeigenwerte des harmonischen Oszillators ist  $\Gamma \gg \omega$ , können diese Seitenbänder nicht direkt aufgelöst werden.

Die direkte Seitenbandkühlung der Bewegung eines gebundene Ions verlangt daher, dass die Fallenfrequenz  $\omega$  groß sein sollte, im Vergleich zur Laserbreite und der Linienbreite des getriebenen atomaren Übergangs. Damit sind die einzelnen Seitenbänder spektral aufgelöst und der Laser kann selektiv auf das niedrigere, so genannte rote, Seitenband verstimmt werden:  $\Delta = -\omega$ . In diesem Fall ist jede Anregung in den oberen Zustand  $|\uparrow\rangle$  mit einer Reduktion der Vibrationsquantenzahl  $n$  verbunden:  $\Delta n = -1$ .

Befindet sich das Ion zusätzlich im so genannten Lamb-Dicke-Regime, so bleibt der Bewegungszustand des Ions, bei der spontanen Emission eines Photons, die meiste Zeit erhalten. Um dies qualitativ zu erkennen betrachtet man zuerst die Definition des Lamb-Dicke-Regimes, das durch  $\eta^2 \ll 1$  charakterisiert wird, wobei  $\eta = |\vec{k}|z_0 = k\sqrt{\hbar/(2m\omega)}$  den Lamb-Dicke-Parameter, mit der Ausdehnung  $z_0$  des Wellenpaketes des Ions im Schwingungsgrundzustand, bezeichnet. Aus der Definition des Lamb-Dicke-Parameters wird ersichtlich, dass sein Quadrat das Verhältnis von Energie  $E_{recoil} = \hbar^2 k^2 / (2M)$  des Photonenrückstoßes zum Energieabstand  $\hbar\omega$  der harmonischen Oszillator-Niveaus darstellt. Somit gilt im Lamb-Dicke-Bereich:

$$\eta^2 = \frac{E_{recoil}}{\hbar\omega} \ll 1 \quad \longleftrightarrow \quad E_{recoil} \ll \hbar\omega. \quad (1.36)$$

Für  $\eta^2 \ll 1$  ist auch die Rückstoßenergie  $\eta^2 \hbar\omega$  kleiner als der energetische Abstand der harmonischen Energieniveaus, so dass die Emission eines einzelnen Photons, analog zum Mößbauer-Effekt der Kernphysik (nur, dass der Rückstoß hier sinnbildlich von der Falle aufgenommen wird), nicht den Bewegungszustand des Ions ändern wird, die Schwingungsquantenzahl bleibt erhalten.

Bei Einstrahlung von Laserlicht auf dem roten Seitenband wird bei jedem Absorptions-Emissions-Zyklus somit die Schwingungsquantenzahl um Eins vermindert, bis das Ion den Grundzustand der Bewegung erreicht. Dort ist es dann von der Laseranregung (bis auf Heizmechanismen) entkoppelt. Direktes Seitenbandkühlen wird in der Regel an Doppler-Laserkühlung angeschlossen, die das Ion vor der

Seitenbandkühlung in den Lamb-Dicke-Bereich bringt. In der Regel werden für die beiden Arten der Kühlung verschiedene Übergänge im Ion verwendet: schmalbandige für das Seitenbandkühlen und breitere für das Doppler-Kühlen.

Direktes Seitenbandkühlen im Lamb-Dicke-Bereich verringert somit die mittlere Besetzungszahl  $\langle n \rangle$  (gleichbedeutend mit der Phononenanzahl des Systems) und damit die Temperatur des Teilchens, wenn man selbige über  $\langle n \rangle$  nach der Bose-Einstein-Relation

$$\langle n \rangle = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1} \quad (1.37)$$

definiert.

Die Kühlrate  $K$  beim Seitenbandkühlen hängt von der Schwingungsquantenzahl  $n$  ab und kann als das Produkt aus Zerfallsrate des angeregten Zustandes und dessen Besetzungswahrscheinlichkeit durch

$$K_n = \Gamma \frac{(\eta\sqrt{n}\Omega)^2}{2(\eta\sqrt{n}\Omega)^2 + \Gamma^2} \quad (1.38)$$

berechnet werden. Der Bewegungsgrundzustand  $|n=0\rangle$  ist kein absolut dunkler Zustand, da immer noch nicht-resonante Anregung nach  $|n=1\rangle$  aus dem Grundzustand stattfinden kann, die ein Kühllimit beim Seitenbandkühlen festlegt. Unter den Annahmen, dass  $\langle n \rangle \ll 1$  und, dass die Rabifrequenz  $\Omega$  kleiner als die Zerfallsrate des angeregten Zustandes ist, erhält man durch Lösen der Ratengleichungen [73, 105, 125, 126]:

$$\langle n \rangle_{min} = \frac{\Gamma^2}{4\omega^2} \left( \left( \frac{\hat{\eta}}{\eta} \right)^2 + \frac{1}{4} \right), \quad (1.39)$$

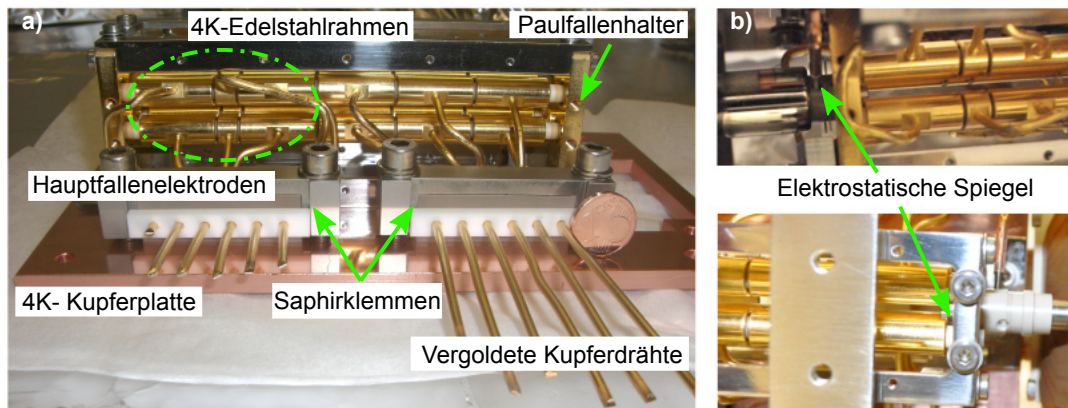
mit den zwei verschiedenen Lamb-Dicke-Parametern  $\hat{\eta}, \eta$  für den spontanen Emissions- bzw. den stimulierten Absorptions-Prozess. Im Bereich aufgelöster Seitenbänder mit  $\Gamma \ll \omega$  kann das Ion folglich bis in den Grundzustand der Bewegung, mit hoher Wahrscheinlichkeit, gekühlt werden, wie experimentell z.B. in [127] gezeigt.

### 1.3 Eine kryogene Paulfalle der ersten Generation

Für die Langzeitspeicherung ( $> \text{min}$ ) hochgeladener Ionen ist die Arbeit im UHV-Bereich mit Drücken deutlich  $< 1 \times 10^{-12} \text{ mbar}$  zur Vermeidung von Ladungsaustausch-Prozessen unerlässlich, wie in Kapitel 2.8 gezeigt werden wird. Solch niedrige Drücke können durch Einsatz kryogener Apparaturen erzielt werden, da hier, bei Temperaturen unter 10 K, sämtliche Restgase, bis auf  $\text{H}_2$  (und He) an den Hitzeschilden (manchmal auch Kälteschilde genannt, engl. heat shield) der Kältestufen adsorbiert werden.

#### Mechanische und thermische Konstruktion

Die kryogene, lineare Paulfalle CryPTEx, ausführlich beschrieben in [50, 129, 130] und in Kollaboration mit der Drewsen-Gruppe der Aarhus Universität im Rahmen der Doktorarbeit von M. Schwarz aufgebaut, besteht aus einer Fallenelektrodenkonfiguration von insgesamt 24 vergoldeten, zylindrischen Elektroden, jeweils mit einem Außendurchmesser von 8 mm. In Abbildung 1.13 a) sind unter anderem die vier mittleren Hauptfallenelektroden mit einer Länge von 5.4 mm, und die restlichen Elektroden mit je 20 mm Länge, zu erkennen. Die komplette Fallenkonfiguration ist, auf den ebenfalls vergoldeten Paulfallenhaltern, auf einer 5 mm dicken Kupferplatte montiert, um eine möglichst homogene Temperaturverteilung zu gewährleisten. Die Spannungsversorgung der einzelnen Elektroden wird über vergoldete Kupferdrähte realisiert, die über Saphirklemmen, zur elektrischen Isolation gegeneinander, mit



**Abbildung 1.13:** In a) sieht man ein Foto der zusammengebauten Elektrodenkonfiguration. Die 24 zylindrischen Fallenelektroden sind über den vergoldeten Paulfallenhalter auf einer 5 mm dicken OFHC-Kupferplatte montiert. Die Hauptfalle von CryPTEx besteht aus 8 20 mm und 4 5.4 mm langen Elektroden. Die Spannungsversorgung erfolgt über die vergoldeten Kupferdrähte, die über Saphirklemmen mit der Bodenplatte verbunden sind. Am rechten unteren Rand ist eine 1 Cent Münze zum Größenvergleich mit abgebildet. Fotografiert im Rahmen von [128]. b) zeigt zusätzliche hohlzylindrische Elektroden, die nachträglich eingebaut wurden, und in den Experimenten dieser Arbeit als elektrostatischen Spiegel eingesetzt werden. Sie sind entlang der Fallenachse, coaxial an beiden Enden der Elektrodenkonfiguration, angebracht.

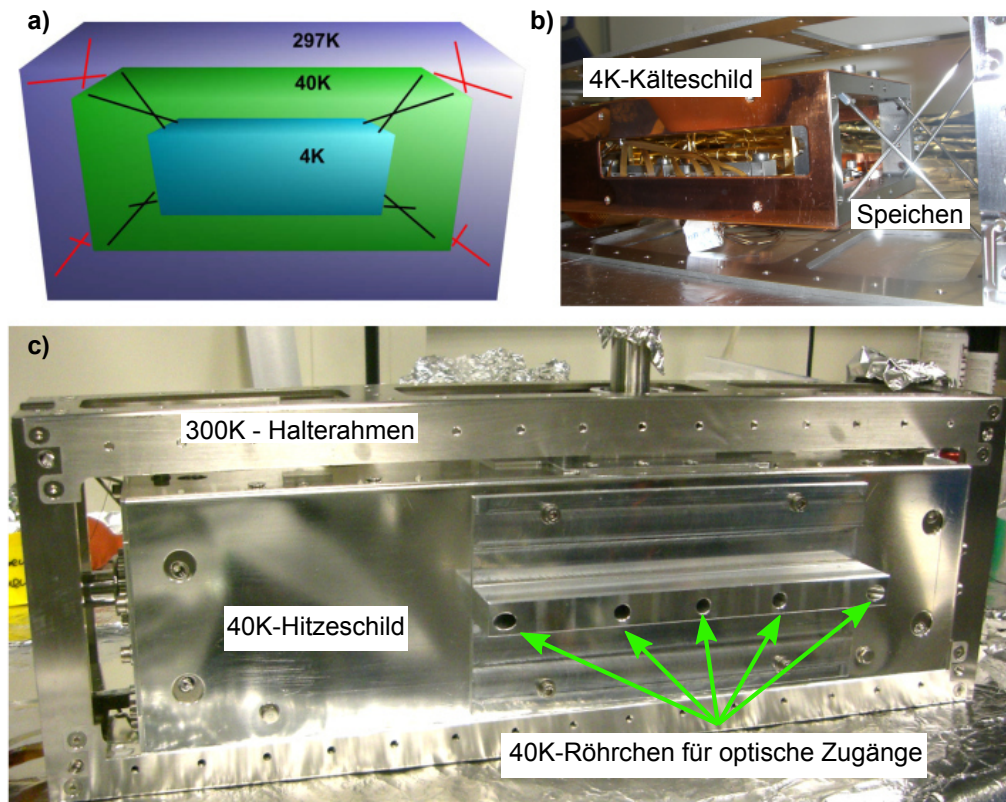
der Kupferplatte verbunden sind. Der Fallenbereich der kryogenen, linearen Paulfalle kann auf Temperaturen von bis zu 4 K abgekühlt werden. Um diese Temperaturen zu erreichen wurde eine, in sich geschachtelte, Konstruktion gewählt, die über mehrere Temperaturstufen (bei 4 K, 40 K und 300 K) die Temperaturdifferenz zur umschließenden Vakuumkammer gewährleistet, wie dies in Abbildung 1.14 a) schematisch dargestellt ist. Jede Temperaturstufe besteht aus einem polierten Edelstahlrahmen (siehe Abbildung 1.14 b) und c)), der jeweils mit den angrenzenden Temperaturstufen über eine gekreuzte Speichenkonstruktionen (siehe Abbildung 1.14 c)) derart verbunden ist, dass eine maximale Versteifung bei gleichzeitig geringer thermischen Konduktivität besteht. Jeweils acht Speichen, mit einem Durchmesser von 2 mm und einer Länge von 10 cm, führen zu einem konduktiven Wärmetransport  $\dot{Q}$  zwischen den Stufen, der sich wie folgt abschätzen lässt:

$$\dot{Q} = -\kappa \Delta T \frac{A}{l}. \quad (1.40)$$

Dabei ist  $A$  die Querschnittsfläche der Speiche,  $l$  ihre Länge und  $\kappa$  der temperaturabhängige Wärmeleitwert des verwendeten Materials. Für den Wärmetransport zwischen den Stufen ergibt sich für den Übergang zwischen der 300 K- und 40 K-Stufe von 0.8 W, sowie für den Übergang von der 40 K- zur 4 K-Stufe ein Wärmetransport von 0.05 W. Die einzelnen Edelstahlrahmen einer Temperaturstufe bilden jeweils einen Käfig, auf dem aussenseitig Kälteschilde montiert sind, wie man in den Abbildungen 1.14 b) und c) teilweise erkennen kann. Alle Edelstahloberflächen und das Innere der umgebenden Vakuumkammer sind poliert, um die Reflektivität der Oberflächen zu erhöhen, um damit die Wärmelast durch thermische Strahlung zu reduzieren. Die Kälteschilde bestehen aus OFHC-Kupfer (99.98 % reines Kupfer) und sind zur Erhöhung ihrer Reflektivität mit Silber beschichtet. Sie sind jeweils, über 2 mm dicke, gewellte OFHC-Kupfer-Bleche, direkt mit der 40 K- bzw. 4 K-Stufe eines Pulsröhrenkühlers (Model SRP-082B-F20H der Firma Sumitomo Heavy Industries, Ltd.) verbunden. Die 40 K-Stufe des Pulsröhrenkühlers kann dabei eine Wärmeleistung von 40 W, die 4 K-Stufe eine Leistung von 4 W abführen. Durch den hohen Wärmeleitwert von OFHC-Kupfer lässt sich der Aufbau, mit einer Gesamtmasse von 3 kg für die 4 K-Stufe und 6 kg für die 40 K-Stufe, innerhalb von 15 h auf die angestrebte Endtemperatur abkühlen.

Während des Abkühl- und Aufwärmvorgangs entstehen nur geringe thermische Verformungen, im Bereich  $< 100 \mu\text{m}$ , da die Ausdehnungskoeffizienten von OFHC-Kupfer und dem verwendeten, rostfreien Stahl sehr ähnlich sind. Zur Reduzierung von Vibrationen durch den Pulsröhrenkühler (in der Größenordnung von  $7 \mu\text{m}$  bis  $9 \mu\text{m}$ ) und um einen direkten axialen Durchschuss entlang der Fallenachse zu ermöglichen ist der Kältekopf an einem Sechsfachkreuz oberhalb der Vakuumkammer der Falle angebracht.

Neben den beiden axialen Zugängen zur Falle, durch die ein axialer Einschuss aus externen Ionenquellen ermöglicht wird, besitzt CryPTEx weitere 13 optische Zugänge. 5 Zugänge befinden sich horizontal auf jeder Seite der Falle unter den Winkeln  $90^\circ$ ,  $68^\circ$  und  $45^\circ$  zur Fallenachse. Senkrecht zur Fallenachse und jeweils unter  $45^\circ$  zu dieser befinden sich die restlichen optischen Zugänge. Für die Vielzahl an optischen



**Abbildung 1.14:** In a) sind die verschiedenen Temperaturstufen von CryPTEx, samt der thermisch leitenden Verbindungsspeichen, dargestellt. Entnommen aus [130]. Das Foto in b) zeigt die Speichen zwischen der 40 K- und der 4 K-Stufe, die zur besseren mechanischen Verstärkung überkreuzt eingespannt sind. Das hier noch nicht versilberte, Kälteschild der 4 K-Stufe ist auf der Vorderseite zu sehen. Fotografiert im Rahmen von [128]. In c) ist der polierte Edelstahlhalterrahmen der 300 K-Stufe, sowie das fertige 4 K-Kälteschild zu erkennen. Die 40 K-Röhrchen für die optischen Zugänge sind direkt auf die Fallenmitte der Hauptfallenregion ausgerichtet. Fotografiert im Rahmen von [130].

Zugängen sind Öffnungen in den Kälteschilden notwendig. In diese Öffnungen sind Edelstahlröhrchen verbaut, die zu einer Reduzierung der thermischen Strahlung, durch eine Verringerung des Raumwinkels, aus dem Schwarzkörperstrahlung von der 300 K- Stufe in das Fallenzentrum gelangen kann, auf  $2 \pm 1\%$  führen, so dass  $98 \pm 1\%$  der einfallenden Schwarzkörperstrahlung von der 4 K- Stufe kommt und somit die Wärmelast im Fallenbereich auf einen Wert verringert wird, bei dem der Pulsröhrkühler die gewünschte Endtemperatur erreichen kann.

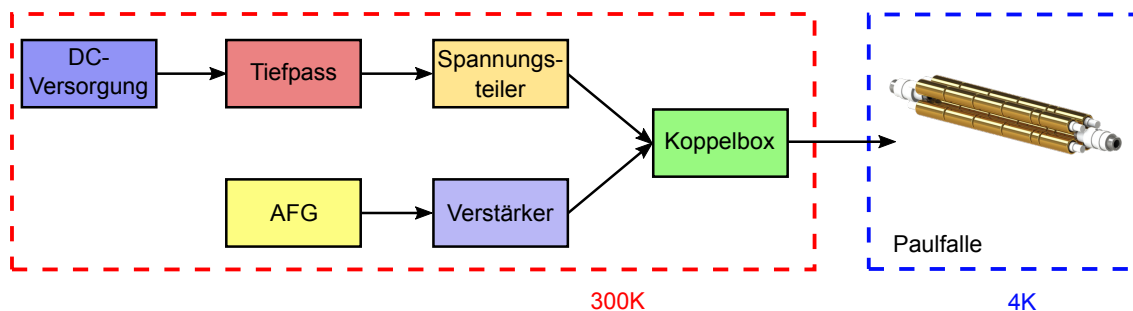
Aufgrund einer vermuteten Wärmebrücke und Verunreinigungen im He-Kreislauf des Pulsröhrkühlers, konnte die innerste Temperaturstufe während der Experimente nur noch auf 8 K abgekühlt werden. Vor Kurzem wurden jedoch, nach einer Wartung des Kältekopfes, wieder Temperaturen von  $\approx 6$  K erreicht.

## Fallenelektronik

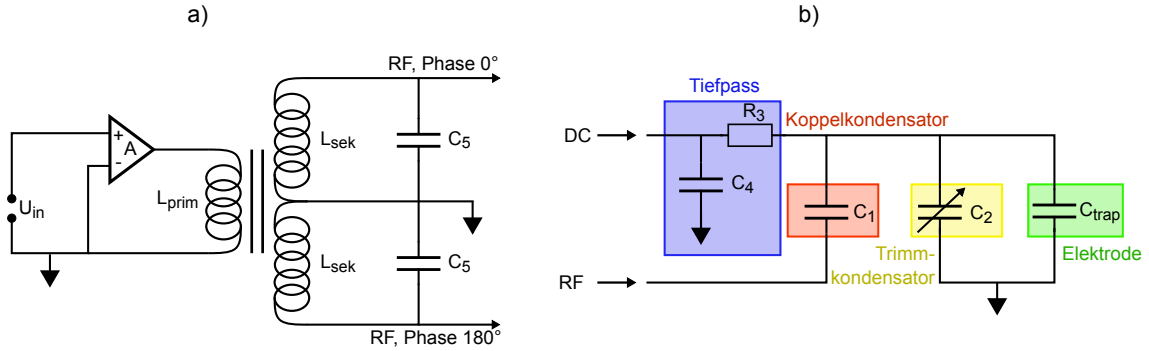
Die Fallenelektronik von CryPTEx wurde von derjenigen für eine der Raumtemperatur-Paulfallen der Drewsen-Gruppe übernommen und wird in der Veröffentlichung [131] von P.F. Herskind ausführlich beschrieben. Charakteristikum der Elektronik besteht in der individuell anpassbaren Höhe der DC-Spannung und RF-Spannungsamplitude für jede der 24 Fallenelektroden. Dies wurde ursprünglich so entwickelt, um das RF-Potentialminimum radial um bis zu 100  $\mu\text{m}$  verschieben zu können, mit dem Ziel, die Ionen im optischen Feld eines, in die Paulfalle integrierten, Resonators an geeigneter Stelle positionieren zu können.

Die RF-Spannung für die Fallenelektroden wird im vorliegenden Experiment von einem Frequenzgenerator (AFG) geliefert, dessen Ausgangssignal durch einen HF-Verstärker, über einen LRC-Schwingkreis an die Fallenelektroden eingekoppelt und letztlich mit einer DC-Spannung überlagert wird (siehe Abbildung 1.15).

Über einen toroidalen Transformator mit Eisenkern, mit 13 Windungen auf der Fallenseite und 4 auf der Primärseite, wird das RF-Signal induktiv in den LRC-Schwingkreis eingekoppelt, wobei die Falle selbst den kapazitiven Teil des LRC-Schwingkreises bildet. Eine schematische Skizze, wie die beiden Phasen der RF-Spannung in der elektronischen Koppelbox erzeugt werden, ist in Abbildung 1.16 a) zu sehen. Zwei, um  $180^\circ$  phasenverschobene, Signale für die Fallenelektroden von diagonal gegenüberliegenden Stäben werden erzeugt, indem man zwei getrennte Schwingkreise, mit gegenläufig gewickelten Spulenwindungen, an die Primärseite koppelt. Jede so erzeugte Phase wird an jeweils 12 Kanäle für die Fallenelektroden, über den in Abbildung 1.16 b) dargestellten Koppelkondensator  $C_1$ , kapazitiv weiter-



**Abbildung 1.15:** Schematische Darstellung der Spannungsversorgung der Paulfallenelektroden. Der DC-Spannungsanteil wird über einen Spannungsteiler von einem Gleichspannungsnetzteil geliefert und über einen Tiefpass auf der Koppelelektronik mit der RF-Spannung überlagert. Da die Amplitude der RF-Spannung vom Frequenzgenerator (AFG), selbst mit dem Transformator noch zu gering wäre, wird sein Ausgangssignal noch vor dem Überlagern mit der DC-Spannung in der Koppelbox mit Hilfe eines HF-Verstärkers verstärkt. Die Koppelbox versorgt dann jede der 24 Elektroden der Paulfalle individuell über einen eigenen Kanal mit der entsprechenden Spannung  $U_i(t) = U_i^{RF} \cos(\Omega_{RF}t + \Phi_i) + U_i^{DC}$  an der  $i$ -ten Elektrode ( $\Phi_i$  gehört je nach Lage der Elektrode zu einer der beiden Phasen). Der eine, nach rechts weisende Pfeil aus der Koppelbox steht folglich symbolisch für 24 getrennte Leitungen, die in einem Flachbandkabel von Raumtemperatur zu den kryogenen Elektroden geführt werden.



**Abbildung 1.16:** a) Schematische Darstellung der Elektronik für die Erzeugung der beiden RF-Phasen. Das Eingangssignal vom Frequenzgenerator  $U_{in}$  wird vom HF-Verstärker A verstärkt, bevor es auf die Primärspule des Koppeltransformators gelangt. Die Sekundärseite des Transformators besitzt zwei Sekundärspulen, die gegenläufig gewickelt sind und so RF-Spannungen entgegengesetzter Phase erzeugen. Die Resonanzschwingkreise auf der Sekundärseite, bestehend aus der Induktivität  $L_{sek}$  und der anpassbaren Kapazität  $C_5$ , führen zusätzlich zu einem Bandpassverhalten. Ohne den Verstärker A würde aber auch das Resonanzverhalten des Resonanzschwingkreises nicht ausreichen, um die benötigten RF-Spannungsamplituden für die Paulfalle zu liefern. b) Das hier vereinfacht dargestellte Schaltdiagramm für die  $i$ -te Fallenelektrode zeigt die Überlagerung von RF- und DC-Spannung, sowie die Möglichkeit der Feineinstellung der gewünschten RF-Spannungsamplitude an der  $i$ -ten Fallenelektrode über den  $i$ -ten Trimmkondensator  $C_2$ .

geleitet. Des Weiteren ist in Abbildung 1.16 b) dargestellt, wie die Gesamtspannung der individuellen Elektroden zustande kommt. Über einen Tiefpass, bestehend aus dem Widerstand  $R_3$  und dem Kondensator  $C_4$ , wird die DC-Spannung dem, über den Koppelkondensator  $C_1$  eingekoppelten, RF-Signal überlagert. Der Tiefpass dämpft die eingekoppelte RF-Spannung in Richtung des DC-Netzteils, so dass dieses geschützt bleibt, während der Koppelkondensator  $C_1$  verhindert, dass Gleichspannung auf die Sekundärseite des Transformators gelangt. Der Koppelkondensator jedes Kanals minimiert zudem den Einfluss aller 12 Koppelkanäle, beider Wechselspannungsphasen, gegeneinander, da diese über die Sekundärseite des Transformators miteinander verbunden sind und sich gegenseitig beeinflussen. Die, bei den typischen RF-Arbeitsspannungen, somit erzeugte hohe Impedanz entkoppelt die Kanäle fast vollständig voneinander.

Der Trimmkondensator  $C_2$  und die Elektrodenkapazität  $C_{trap}$  bilden gemeinsam, in Serie mit dem Koppelkondensator  $C_1$ , einen kapazitiven Spannungsteiler, so dass über den Trimmkondensator  $C_2$ , die Spannungen an den einzelnen Elektroden individuell eingestellt werden können. Die Kapazität einer Fallenelektrode liegt in der Größenordnung von 40 pF, die des Koppelkondensators wird als 22 pF gewählt und die Trimmkondensatoren können von 1 pF bis 30 pF variiert werden. Die an den Fallenelektroden anliegende RF-Spannung ist dabei durch folgende Beziehung gegeben:

$$U_{trap} = U_{RF} \frac{C_1}{C_1 + C_2 + C_{trap}}. \quad (1.41)$$

Die Anpassung der RF-Spannungsamplituden an den individuellen Elektroden ist aufgrund der unterschiedlichen Kapazitäten der Elektroden, bedingt durch deren verschiedene Länge, die Länge der Leitungen sowie durch parasitäre Kapazitäten, notwendig, um ungewollte Spannungsdifferenzen zwischen den einzelnen Elektroden zu verhindern und somit zusätzliche RF-Felder in axialer Richtung zu minimieren. Außerdem kann die Korrektur der Elektrodenkapazität auch zur Verschiebung des radialen Potentialminimums auf die geometrische Fallenachse genutzt werden, sollte dies erforderlich sein.

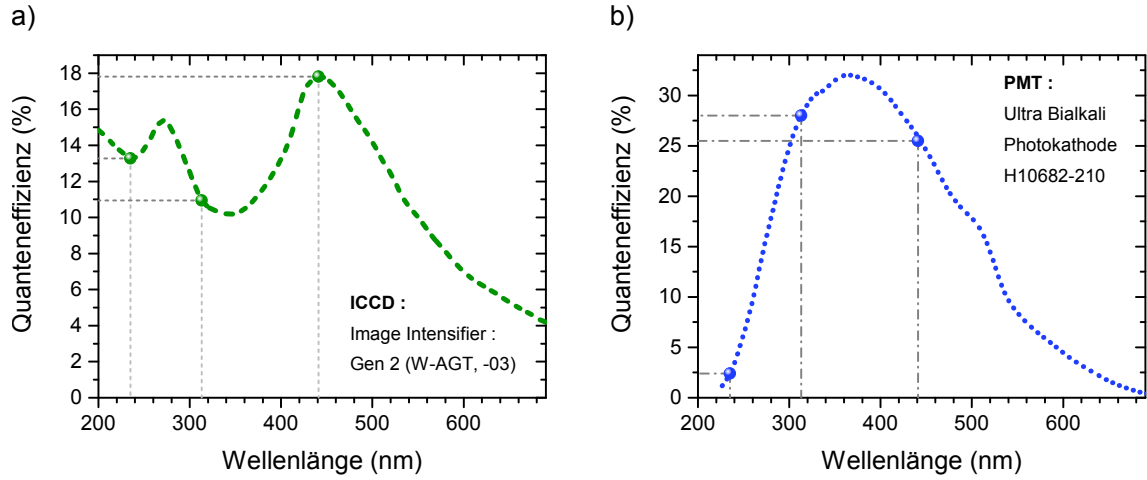
In der vorliegenden Arbeit wurden zwei verschiedene Versionen, der oben kurz erläuterten Elektronik, verwendet, wobei die Hauptunterschiede der beiden Varianten darin bestehen, dass bei der Variante B kritische Bauteile vorsortiert wurden und sie zusätzlich im Gegensatz zur Variante A die Trimmkondensatoren  $C_2$  besitzt. In Variante A der Koppelelektronik wurden Bauteile für  $C_1$  verwendet deren Toleranz 5 % beträgt, was zu Spannungsdifferenzen, zwischen unbelasteten Koppelkanälen, von 10 % und damit zu einer ausgeprägten axialen Mikrobewegung [132–134] der Ionen, führte. Bei Variante B sind die Koppelkondensatoren  $C_1$  mit einer Toleranz 0.0807 % vorsortiert, was schon ohne die Verwendung von Trimmkondensatoren zu einer Spannungsgenauigkeit von  $10^{-4}$  an den Elektroden führt, wenn die Kapazitäten aller Elektroden gleich groß wären. Mit den Trimmkondensatoren lassen sich die Spannungen an den einzelnen Elektroden so einstellen, dass in der Hauptfalle die axiale Mikrobewegung minimiert ist, was für zukünftige Spektroskopie an kalten HCIs von großem Vorteil sein wird. Für eine Charakterisierung der Koppelelektronik von CryPTE<sub>x</sub> sei hier auf die, während dieser Doktorarbeit betreute, Masterarbeit [135] verwiesen.

Sämtliche, in dieser Arbeit gezeigten, dreidimensionalen Coulomb-Kristalle wurden mit der Elektronik-Variante B (vernachlässigbare axiale Excess-Mikrobewegung) aufgenommen, während alle gemischten Ionenketten unter Variante A erzeugt wurden.

## Fluoreszenz-Detektionssystem

Die in der Paulfalle gespeicherten  $\text{Be}^+$ -Ionen werden durch Einsammeln bzw. Abbilden des von ihnen, während der Absorptions-Emissions-Zyklen des Laserkühlens, emittierten Fluoreszenzlichtes detektiert. Hierfür wurde eine Linse, thermalisiert mit der 4K-Stufe, im Vakuum in unmittelbarer Nähe der Hauptfallenelektroden eingebaut (siehe Abbildung 2.25 in Kapitel 2.5). Für einen Teil der Messungen handelt es sich hierbei um eine plan-konvexe Linse (Thorlabs LA4130) mit einer Brennweite von  $f = 38.2 \text{ mm}$ , bei einer Wellenlänge von  $313 \text{ nm}$  und einer Temperatur von  $-265^\circ\text{C}$ . Direkt vor (vom Fallenzentrum aus schauend) der Linse befand sich eine Irisblende mit einem Innendurchmesser von  $5 \text{ mm}$ . Die Linse war ca.  $41 \text{ mm}$  vom Fallenzentrum entfernt eingebaut und bewirkte, analog zu einem Mikroskop-Objektiv, die Abbildung der  $\text{Be}^+$ -Ionen mit einer Vergrößerung von ca.  $M = -13.5$ . Die Lichtsammeleffizienz der Linse betrug in etwa 0.1 % (numerische Apertur:  $NA \approx 0.066$ ). Diese Variante des Abbildungssystems wird im Folgenden mit A bezeichnet. Das eingesammelte Fluoreszenzlicht wird außerhalb der Vakuumkammer über einen Strahl-





**Abbildung 1.17:** Quanteneffizienz in Abhängigkeit der Wellenlänge des zu detektierenden Lichtes für die beiden im Experiment verwendeten Detektionseinheiten. a) Quanteneffizienzen des iStar ICCD-Detektors Modell-Nr A-DH740-18U-03 der Firma Andor. b) Quanteneffizienzen der Ultra Bialkali Photokathode des PMT photon counting heads Modell-Nr H10682-210 der Firma Hamamatsu.

teiler im Verhältnis 50 : 50 aufgeteilt. Ein Arm geht direkt auf die Photokathode eines PMTs, welches eine Zählrate liefert, die proportional zur Fluoreszenzrate ist. Das PMT wird z.B. für Messungen zur Kompensation der Mikrobewegung nach der Photonenkorrelationsmethode [132] verwendet. Der andere Strahlteilerarm leitet das Licht auf die Photokathode des Bildverstärkers der iStar ICCD der Firma Andor weiter. Die Quanteneffizienzen der beiden Detektionseinheiten (iCCD und PMT) sind in Abhängigkeit der Wellenlänge, nach Herstellerangaben, in Abbildung 1.17 zu sehen. Die Pixelgröße der CCD-Kamera beträgt  $13.5\ \mu\text{m} \times 13.5\ \mu\text{m}$  bei  $512 \times 2048$  Pixeln. Bei Variante B des Abbildungssystems wurde statt der plano-konvexen eine asphärische Linse (Edmund Optics 48 – 537) mit einem Arbeitsabstand von 25 mm eingebaut. Vergrößerungsfaktor und Lichtsammeleffizienz betrugen hier  $M = -14.4(5)$  und 2 % ( $NA \approx 0.3$ ). Die Vergrößerungsfaktoren wurden mit Hilfe einer Glasfaser, mit einem Außendurchmesser von  $106(3)\ \mu\text{m}$ , bestimmt. Dazu wird diese mit ihrer Spitze im Fallenzentrum positioniert und der Kühlaser auf die Faser ausgerichtet. Durch Detektion des Streulichts kann die Faser auf die CCD abgebildet und damit  $M$  bestimmt werden.

Sämtliche, in dieser Arbeit gezeigten CCD-Bilder dreidimensionaler Coulomb-Kristalle wurden mit der Detektions-Variante B aufgenommen, während alle gemischten Ionenketten unter Variante A abgebildet wurden.

Bei typischen experimentellen Belichtungszeiten zwischen 0.1 s und 10 s werden die, durch das RF-Feld induzierten, Quadrupoldeformationen der Coulomb-Kristalle (Säkularbewegung) in den aufgenommenen CCD-Bildern zeitlich heraus gemittelt. Die Richtung der, durch das RF-Feld getriebenen, radialen Mikrobewegung hängt von der Position der Ionen in der Falle ab. Nur Ionen die sich in der Nähe der horizontalen Fallenebene und der Fallenchse befinden können ohne wesentliche Verschmierung

des Fluoreszenzsignals aufgrund der Mikrobewegung abgebildet werden, da hier die Bewegungsrichtung der Mikrobewegung orthogonal zur CCD-Kamera erfolgt.

## 1.4 Sympathetisches Kühlen

Insgesamt wurde bisher nur eine limitierte Anzahl an einfach geladenen Ionen direkt lasergekühlt. Für die Mehrheit hochgeladener und auch molekularer Ionen ist direktes Laserkühlen herausfordernd (z.B. mehrere Laser und Repumper) oder unmöglich, wenn das relevante Atom keinen geeigneten (einfaches Niveau-Schema, schneller, (quasi)-geschlossener Übergang) Kühlübergang besitzt. In diesem Fall kann das interessante Ion indirekt gekühlt werden, indem es gemeinsam mit direkt lasergekühlten Ionen in einen mikroskopischen Raumbereich, z.B. in einer Paul- oder Penningfalle, eingeschlossen wird. Dann kommt es durch die Coulomb-Wechselwirkung wiederholt zu Stößen mit entsprechendem Energietransfer auf die Kühlionen, denen wiederum die Energie kontinuierlich durch Laserkühlung entzogen wird.

Diese indirekte Kühlmethode wurde bereits in den Anfängen des Laserkühlens, erstmals für Ionen in Penningfallen, demonstriert [43, 136]. Seitdem wird das Kühlprinzip auf eine stetig wachsende Variation neutraler und geladener Teilchen in verschiedenen Fallentypen angewandt (atomare und molekulare Ionen, Elementarteilchen, neutrale Teilchen [137]). Grundlage des sympathetischen Kühlens ist die Möglichkeit des gleichzeitigen Speicherns der beiden Teilchensorten in einer Falle, so dass es aufgrund der gegenseitigen Wechselwirkung zu einem wiederholten Energietransfer in Richtung Kühlion kommen kann. Das Konzept ist insofern universell und kann daher auf verschiedenen Fallen, in denen beide Ionensorten gleichzeitig gespeichert werden können, angewandt werden, um die gewünschten Kühleigenschaften der lasergekühlten Teilchensorte (LC) auf die interessierende, aber nicht direkt kühlbare, Teilchensorte (SC) zu transferieren. Im Folgenden erfolgt die Beschränkung auf den hier relevanten Fallentyp der Paulfalle. Gespeicherte Ionen bilden hier, bei ausreichend starker Kühlung, geordnete Strukturen aus (Coulomb-Kristalle, [138]). Für Präzisions-Spektroskopie ist nicht nur die prinzipielle sympathetische Kühlung von Bedeutung, vielmehr ist eine sympathetische Kristallisation und die damit verbundenen Temperaturen  $< 10$  mK (für einfach geladene Ionen [138]), für die nicht direkt laserkühlbaren Spezies, erwünscht. Historisch gesehen kam es beim Laden der Kühlionen in die Falle, durch Elektronenstoßionisation eines neutralen Atomstrahls, zur Erzeugung von Restgasionen oder Ionen verschiedener Isotope, die sich dann, nach sympathetischer Kristallisation, als dunkle, nicht-fluoreszierende Gitterplätze im Coulomb-Kristall der Kühlionen bemerkbar machten [139].

Der in mehrfacher Hinsicht entscheidende Parameter für den sympathetischen Kühlprozess ist das Verhältnis der  $Q/M$ -Verhältnisse der beiden Ionensorten.

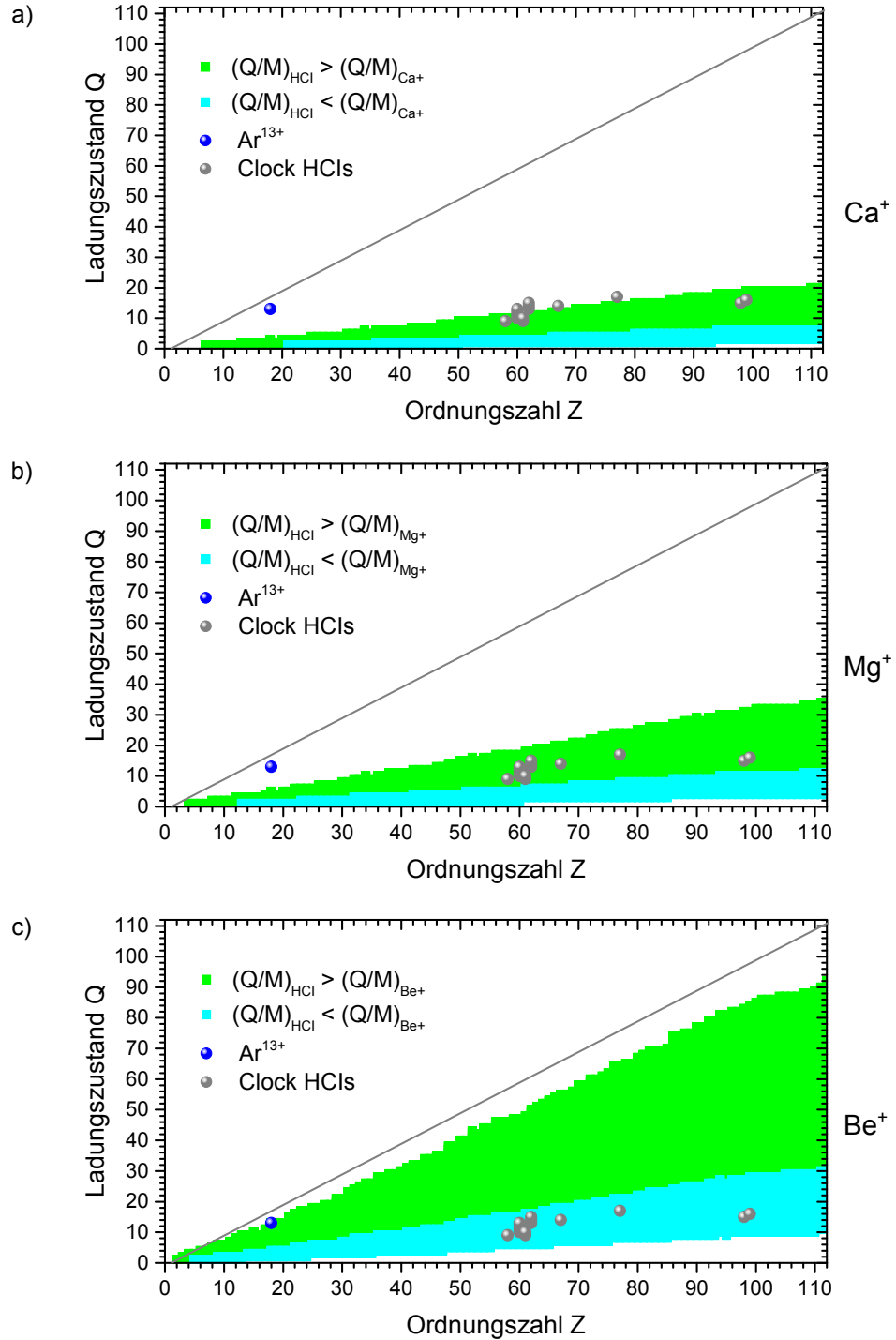
Eine erste Erkenntnis über den  $(Q/M)_{SC}$ -Bereich der SC-Ionensorte, der für ein bestimmtes Kühlion sympathetische Kühlung ermöglicht, stammt aus der Betrachtung des, in Abbildung 1.4 aus Kapitel 1.1.3 gezeigten, Stabilitätsdiagramms der Ionenbewegung in einer linearen Paulfalle. Möchte man zwei Ionensorten mit verschiedenen  $Q/M$ -Verhältnissen gleichzeitig in der Paulfalle speichern, so wird in der Nähe von  $a = 0$  gearbeitet, so dass der Bereich möglicher Werte des radialen Mathieu-Stabilitätsparameters  $q$  maximal wird. Für dreidimensionale Coulomb-Kristalle aus  $\text{Be}^+$ -Ionen führten für CryPTE<sub>x</sub>, in Übereinstimmung mit [138, 140],  $q$ -Werte im Bereich  $[0.07 - 0.8]$  zur stabilen Langzeitspeicherung. Da  $q \propto Q/M$  ist, würde dies

indizieren, dass Ionensorten mit  $Q/M$ -Verhältnissen, die sich um eine Größenordnung unterscheiden, gleichzeitig gespeichert und gekühlt werden können. In diesem Bereich ist die Falle für das Ion mit kleinerem  $Q/M$  noch ausreichend tief, so dass es durch DC-Feld-Imperfektionen nicht zu Ionenverlusten kommt, während der Effekt der RF-Heizung für das Ion mit größerem  $Q/M$  nicht zu ausgeprägt wird.

Ist man nicht nur an einer prinzipiellen Kühlung interessiert, sondern auch an der minimal erreichbaren finalen Temperatur und der sympathetischen Kühlrate, so ergeben sich empirisch strengere Einschränkungen für den  $Q/M$ -Unterschied zwischen SC- und LC-Ionen. Für ein bestimmtes LC-Ion hängt der, zur sympathetischen Kristallisation führende, Bereich der  $Q/M$ -Verhältnisse der SC-Ionen davon ab, ob es um die Ko-Kristallisation in einer gemischten Ionenkette oder einem dreidimensionalen Kristall geht.

Für 3D-Kristalle hängt die sympathetische Kühlrate nicht nur von dem möglichen Energietransfer bei den Coulomb-Stößen ab, sondern kann auch durch die räumliche Trennung der beiden Ionenspezies, aufgrund verschieden starker Pseudopotentiale, zusammen mit der Coulomb-Abstoßung, limitiert sein. Hier umgibt die Ionenspezies mit dem kleineren  $Q/M$ -Verhältnis transversal die andere Ionenspezies mit größerem  $Q/M$ -Verhältnis. Je größer der Unterschied zwischen den beiden  $Q/M$ -Verhältnissen, desto stärker wird die eine Spezies radial nach außen gedrückt. Dadurch wird zum einen die Kopplung zwischen beiden Ionensorten reduziert, zum anderen können die äußeren Ionen stärker von der RF-Heizung betroffen sein. Dies zeigte sich z.B. beim sympathetischen Kühlen des schweren  $\text{AF}^+$ -Moleküls durch lasergekühlte  $^{138}\text{Ba}^+$ -Ionen. Hier lagerten sich die Molekülionen mit einer Masse von 410 u wie zu erwarten außen an. Wie in [141] gezeigt, ergab sich eine erhöhte Temperatur für das Kühlionen-Ensemble, sowie ein deutlicher Temperaturgradient eines Faktors von ca. 3 zwischen den beiden Ionensorten. Dahingegen konnten innen liegende  $\text{H}_2^+$ -Ionen durch lasergekühlte  $^9\text{Be}^+$ -Ionen in [142] auf Temperaturen von wenigen mK gekühlt werden. Bei diesem Ionen-Paar liegen die  $Q/M$ -Verhältnisse einen Faktor 4.5 auseinander. Es kann also von Vorteil sein, wenn die nicht direkt laser-gekühlte Ionensorte sich auf oder nahe an der Fallenachse mit verminderten Heizraten befindet. In [143] wurde das sympathetische Kühlen von Antiwasserstoff-Ionen  $\bar{\text{H}}^+$  durch lasergekühlte  $\text{Be}^+$ -Ionen, mittels Molekuldynamik-Simulationen, untersucht. Hier unterscheidet sich das  $Q/M$ -Verhältnis beider Ionensorten um einen weiteren Faktor 2 im Vergleich zum vorherigen experimentellen Beispiel. Die Simulationen ergaben, dass die Antiwasserstoff-Ionen nur mit Hilfe intermediärer ellipsoidaler Schalen, bestehend aus Ionen deren  $Q/M$ -Verhältnis zwischen denen der anderen beiden Spezies liegt, z.B. aus  $\text{HD}^+$ -Ionen, auf die gewünschten Temperaturen abgekühlt werden können.

Die Dynamik beim sympathetischen Kühlen resultiert einerseits aus dem Gegenspiel zwischen der Coulomb-Abstoßung und dem Fallenpotential, das die Ionen einander annähert, und dem Gegenspiel zwischen Laserkühlung und RF-Heizung auf der anderen Seite. Experimente und Simulationen zeigen, dass die Kopplungsstärke zwischen den Bewegungen der zwei verschiedenen Ionensorten abnimmt, je weiter die  $Q/M$ -Verhältnisse auseinander liegen [143, 144].



**Abbildung 1.18:** Aufstellung aller Ionen des Periodensystems (bis zur Ordnungszahl  $Z = 112$ ), deren Ladungs-zu-Masse-Verhältnis die Relation  $\frac{1}{3} \times (Q/M)_{\text{Kühlion}} < (Q/M)_{\text{HCl}} < 3 \times (Q/M)_{\text{Kühlion}}$  für das jeweils angegeben Kühlion erfüllt. Dabei wurde für die Masse eines hochgeladenen Ions je die Masse des am häufigsten vorkommenden Isotops eingesetzt. HClIs, die im hellgrünen Bereich liegen, würden bei größeren Misch-Coulombkristallen innen liegen, während HClIs aus dem hellblauen Bereich außerhalb eines  $\text{Be}^+$ -Coulomb- Kernkristalls angeordnet wären. Der Blaue Punkt steht je für  $\text{Ar}^{13+}$ , während die grauen Punkte für ausgewählte HClIs stehen, die nach den theoretischen Vorhersagen [9–17] interessante Uhren-Kandidaten sind.

Ebenfalls von Relevanz für die Effizienz des sympathetischen Kühlprozesses ist das reine Massenverhältnis  $M_{SC}/M_{LC}$  der beiden Ionensorten. Wie in dem letzten obigen Beispiel angedeutet, ist es schwieriger eine leichtere Ionensorte, d.h.  $M_{SC}/M_{LC} < 1$ , zu kühlen, als eine schwerere mit  $M_{SC}/M_{LC} > 1$ . In einem vereinfachten Bild kann man sich die Begründung wie folgt denken: Analog zum elastischen Stoß zweier Teilchen ist die Geschwindigkeit des deutlich leichteren Teilchens nach dem Stoß wesentlich größer als die des schweren Teilchens. Stellt man sich nun vor, dass das lasergekühlte Ion das schwerere Teilchen ist, so wird sich dessen Geschwindigkeit bei Stößen mit dem leichten SC-Ion kaum ändern. Da die Grundlage der Doppler-Laserkühlung eine viskose Reibungskraft ist, deren Stärke linear mit der Geschwindigkeit skaliert (siehe Gleichung (1.28) aus Kapitel 1.2.1), folgt daraus direkt eine ineffizientere Kühlung, wenn  $M_{SC}/M_{LC} < 1$  im Gegensatz zu  $M_{SC}/M_{LC} > 1$  gilt.

### Auswahl des Kühllions

Für die Auswahl aus den zur Verfügung stehenden einfach geladenen Kühllionen, wurde für den Zweck des effizienten, sympathetischen Kühlens von HCIs ein konservativer maximaler Faktor von 3 (bzw.  $1/3$ ) für den erlaubten Unterschied zwischen den  $Q/M$ -Verhältnissen der beiden Ionensorten gewählt [138, 143, 144]. Da es sich bei  $\text{Be}^+$  um das leichteste zur Verfügung stehende Kühllion handelt, bietet es, unter dieser Nebenbedingung, die größte Flexibilität bzgl. der sympathetischen Kühlung aller nach dem Periodensystem möglichen hochgeladenen Ionen. Dies wird in Abbildung 1.18 a)-c) illustriert, in der die Aufstellung aller Ionen des Periodensystems (bis zur Ordnungszahl  $Z = 112$ ), deren Ladungs-zu-Masse-Verhältnis die Relation  $1/3 \times (Q/M)_{\text{Kühllion}} < (Q/M)_{\text{HCI}} < 3 \times (Q/M)_{\text{Kühllion}}$  für das jeweils angegebene Kühllion erfüllt, für die leichtesten gängigen Kühllionen  $\text{Be}^+$ ,  $\text{Mg}^+$  und  $\text{Ca}^+$  zusehen ist. Für  $\text{Be}^+$  liegen alle, theoretisch für die Realisierung optischer Uhren und die anschließende Suche nach einer Variation fundamentaler Konstanten vorgeschlagenen HCI-Kandidaten, in dem geforderten Bereich. Dies wäre zwar noch für  $^{24}\text{Mg}^+$  ebenfalls der Fall, aber schon nicht mehr für  $^{40}\text{Ca}^+$ . Das, in dieser Arbeit verwendete Testion  $^{40}\text{Ar}^{13+}$  würde auch für  $^{24}\text{Mg}^+$  als Kühllion deutlich außerhalb dieses Bereiches liegen. Dabei ist zu beachten, dass dieser keine harte Grenze darstellt, sondern vielmehr eine empirische, durch Simulationen gestützte, konservative Abschätzung darstellt. Damit ist davon auszugehen, dass alle HCIs des Periodensystems prinzipiell durch  $\text{Be}^+$  sympathetisch gekühlt und kristallisiert werden können.

## 1.5 Präparation von ${}^9\text{Be}^+$ Coulomb-Kristallen

Die Präparation im Vakuum schwebender, kontinuierlich lasergekühlter  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalle stellt eine grundlegende Voraussetzung für das sympathetische Stoppen und Kühlen einer variablen Anzahl an hochgeladenen Ionen in einer Paulfalle dar. Diese Präparation beinhaltet neben dem stabilen Laserkühlen der einmal gespeicherten  $\text{Be}^+$ -Ionen auch deren Laden in die Paulfalle.

Um den, mit der Injektion von extern erzeugten Ionen in eine Paulfalle verbundenen Aufwand zu vermeiden, werden die Kühlionen typischerweise durch Ionisation neutraler Target-Atome in-situ im Fallenzentrum erzeugt. Dabei stehen prinzipiell zwei verschiedene Projektile für den Ionisationsprozess zur Verfügung - Elektronen für die Elektronenstoßionisation oder Photonen für die Photoionisation. Der Ladeprozess selbst sollte "sauber", effizient und kontrolliert ablaufen. Damit ist mit "sauber" u.a. gemeint, dass der Ionisationsvorgang nach Möglichkeit isotopenselektiv sein sollte und zusätzlich auch keine Restgasionen in die Falle mit hinein geladen werden. Des Weiteren sollte die Zahl der benötigten neutralen Atome möglichst gering sein, so dass z.B. kollimierte und/oder gepulste Atomstrahlen verwendet werden können. Dies verhindert eine Kontamination der Paulfallenelektroden und vermeidet somit Instabilitäten und Drifts der Fallenpotentiale. Dieser Aspekt des sauberen Ladens kann am besten durch einen effizienten Ionisationsprozess mit relativ hohem Wirkungsquerschnitt gewährleistet werden.

Da diese Kriterien durch resonanzverstärkte Mehrfach-Photoionisation besser als durch Elektronenstoßionisation erfüllbar sind, hat sich diese Methode der Photoionisation mittels schmalbandiger CW-Laser innerhalb des letzten Jahrzehnts zum Stand der Technik in Bezug auf das Einbringen einfach geladener Kühlionen in Paulfallen entwickelt. Dies zeigt sich auch an den entsprechenden Publikationen von Ionenfallen-Gruppen über den Ladeprozess der Kühlionen mittels resonanzverstärkter Photoionisation aus dem entsprechenden neutralen Target-Element ( $\text{Mg}^+$  [145],  $\text{Ca}^+$  [146–148],  $\text{Ba}^+$  [149–151],  $\text{Sr}^+$  [152–154],  $\text{Yb}^+$  [155], [156] und [157] für resonanzverstärkte Photoionisation erhöhter Effizienz durch die Verwendung von Ultrakurzpulslasern, usw.). Hier wurde unter anderem auch gezeigt, dass durch den Übergang von Elektronenstoß- zu Photoionisation zum einen über Wochen kaum noch Änderungen der Micromotion-Kompensations-Spannungen nötig waren [152] und zum anderen das Aufladen von Isolatoren in Paulfallen-Nähe (z.B. von in die Paulfalle integrierten Resonator-Spiegeln [145]), mit den damit verbunden Drifts der Ionenpositionen, durch die Elektronen vermieden werden konnte.

Natürlich vorkommendes Beryllium ist mono-isotop, so dass im vorliegenden Experiment Isotopenselektivität kein entscheidendes Kriterium ist. Es sollen jedoch innerhalb von Sekunden große  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalle mit  $10^4$  Ionen erzeugt werden können, so dass der Effizienz des Ionisationsprozesses eine entscheidende Bedeutung zukommt. Gleichzeitig sollte das deterministische Laden von einzelnen  $\text{Be}^+$ -Ionen, z.B. für die Fallencharakterisierung, möglich sein. Die hierfür benötigte Kontrolle über die  $\text{Be}^+$ -Ionenproduktion geschieht über die für den Produktionsmechanismus relevanten physikalischen Größen. Im vorliegenden Experiment, bei dem  $\text{Be}^+$  durch

resonanzverstärkte Zwei-Photonenionisation aus einem thermischen Be-Atomstrahl erzeugt wird, sind dies der Be-Atomfluss in der Falle, sowie Intensität und Verstimmung des Photoionisationslasers.

Die Bereitstellung eines Vorrats an neutralen Target-Atomen im Fallenzentrum kann durch Laser-Ablation eines Festkörpers in unmittelbarer Fallen-Nähe [158, 159] oder durch resistives Heizen eines Festkörpers und der damit verbundenen Sublimation erfolgen (siehe obige Referenzen). Auch die Photoionisation aus einer beladenen magneto-optischen Falle ist möglich [160], jedoch mit erhöhtem Aufwand verbunden. Um mit einer möglichst geringen Anzahl an verschiedenen Lasersystemen arbeiten zu können und den Wärmeeintrag in die kryogene Paulfallenregion zu minimieren, wurde für das vorliegende Experiment ein kollimierter Be-Atomstrahl mit Hilfe eines Be-Ofens, der ca. 1 m von der Fallenregion entfernt ist, erzeugt.

Damit die tatsächliche  $\text{Be}^+$ -Laderate ungefähr der Photoionisationsrate neutraler Be-Atome entspricht, wird zeitgleich zum Photoionisationsprozess bereits der Kühllaserstrahl (gemeinsam mit dem Repumper-Laserstrahl) auf die erzeugten Ionen gerichtet. Aufgrund der typischen Fallentiefen in der Größenordnung 1 eV, entsprechend 5400 K für  $\text{Be}^+$  (siehe Kapitel 1.1.3 Seite 23), können diese nach der Produktion kurzfristig gespeichert werden. Sie müssen für eine Langzeitspeicherung über Stunden und Tage aber zeitnah zur Produktion gekühlt werden, um RF- und Mikrobewegungs-Heiz-Prozessen und damit einhergehenden Verlusten entgegen zu wirken. Bei geeigneter Wahl der Fallen und Kühllaserparameter bilden sich  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalle als geordnete Strukturen in der Paulfalle aus. Diese stehen dann für die Implantation hochgeladener Ionen zur Verfügung.

In den folgenden Abschnitten wird zuerst die Erzeugung eines kollimierten Be-Atomstrahls beschrieben, von Ofenaufbau und -konzept über den experimentell zu erwartenden Be-Atomfluss in der Fallenregion. Anschließend geht es um die Ausrichtung von Photoionisations-Laserstrahl und Be-Ofen auf das Fallenzentrum und aufeinander. Der folgende Abschnitt diskutiert allgemeingültig die resonanzverstärkte Zwei-Photonenionisation und die konkret für das Experiment zu erwartenden Be-Photoionisationsraten. Des Weiteren wird die Kontrolle der  $\text{Be}^+$ -Laderate durch die Laserparameter sowie die Erzeugung des Laserlichtes bei einer Wellenlänge von 235 nm beschrieben. Die nächsten Abschnitte sind dann dem Laserkühlen der gespeicherten  $\text{Be}^+$ -Ionen gewidmet. Ausgehend vom relevanten  $\text{Be}^+$ -Termschema wird die Ausnutzung der Polarisation des Kühllaserlichts, sowie Notwendigkeit und Parameter des Repumper-Laserstrahls beschrieben. Es folgen der Aufbau und die Charakterisierung des Kühllaser-Systems und abschließend die Temperaturabschätzung für ein einzelnes  $\text{Be}^+$ -Ion mittels zeitgleichen Frequenz-Scans des Kühllasers und Repumpers, sowie die Erzeugung größerer  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalle.



### 1.5.1 Erzeugung eines neutralen, kollimierten ${}^9\text{Be}$ -Atomstrahls

Die Kombination einer kryogenen Paulfalle, mit möglichst niedrigen Drücken in der Hauptvakuumkammer, mit einer resistiv geheizten Beryllium-Quelle resultiert in einigen Anforderungen an das Be-Ofen Konzept.

Zum einen sollte der Be-Ofen so weit von der Paulfalle entfernt und durch Hitzeschilde abgeschirmt sein, dass thermische Strahlung und Wärmeleitung keine Wärmelast in den kryogenen Paulfallenbereich einbringen.

Zum anderen sollte die Vakuumkammer des Be-Ofens, in der durch Ausheiz-Effekte höhere Drücke herrschen können, durch differentiell Pumpen von der Paulfallen-Vakuumkammer weitestgehend entkoppelt sein.

Zudem muss der thermisch, durch Sublimation festen Berylliums im Vakuum, erzeugte Be-Atomstrahl so geformt und kollimiert werden, dass die Paulfallenelektroden unter keinen Umständen vom neutralen Be-Atomstrahl getroffen werden können. Sonst würden sich (bei geringer Be-Kontamination) durch den  $\text{Be}^+$ -Ladeprozess Drifts in den Fallenpotentialen ergeben. Im schlimmsten Fall könnte es zu einem Kurzschluss der Elektroden kommen.

Des Weiteren sollte es eine einfache Möglichkeit geben, den Be-Ofen so auszurichten, dass der erzeugte Be-Atomstrahl den Photoionisationslaser möglichst unter  $90^\circ$  kreuzt, um Dopplerverschiebungen zu minimieren und den Ladeprozess effizienter zu gestalten.

Wichtigste physikalische Bedingung für das Ofen-Konzept ist eine ausreichende Flussdichte neutraler Be-Atome im Wechselwirkungs-Volumen zwischen neutralem Be-Atomstrahl und Photoionisationslaser, bei gleichzeitig möglichst langer Lebensdauer einer einzelnen Ofenfüllung. Es sollen veränderbare  $\text{Be}^+$ -Laderaten zwischen  $1\text{ s}^{-1}$  und  $1000\text{ s}^{-1}$  möglich sein. Zusätzlich sollte der Be-Atomstrahl jederzeit schnell ausgeschaltet werden können. Letzteres wird durch ein elektrisch betriebenes UHV-Ventil realisiert, welches die Paulfallen- von der Be-Ofen-Vakuumkammer trennt.

### Aufbau und thermisches Modell des Ofens

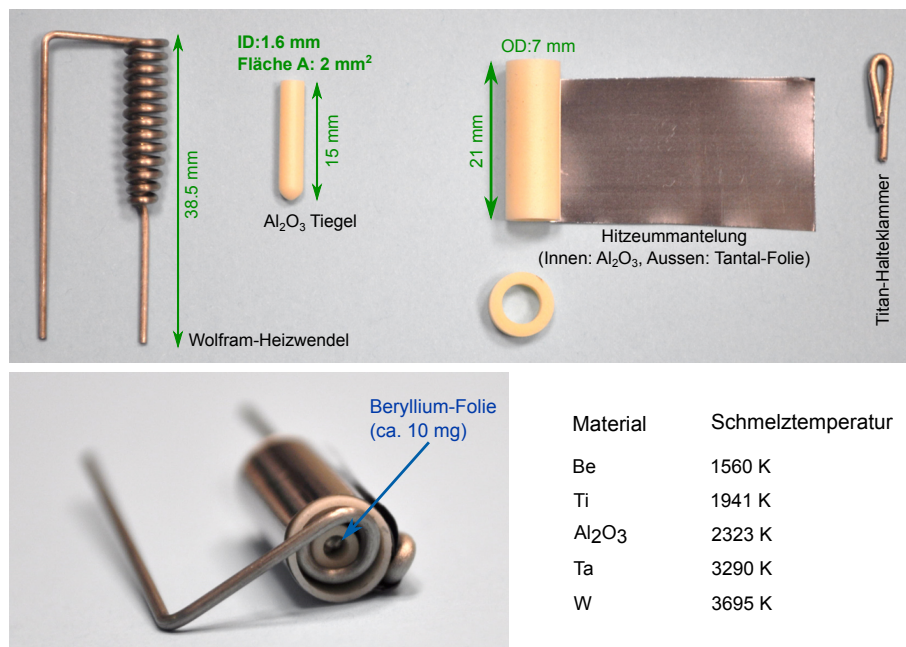
Im Folgenden wird der Aufbau des Ofen-Systems kurz umrissen, die Ausrichtung von Be-Atomstrahl und PI-Laser aufeinander sowie auf das Fallenzentrum beschrieben und die Photoionisationsrate - und damit gekoppelt die  $\text{Be}^+$ -Laderate - in Abhängigkeit der Ofentemperatur abgeschätzt.

Abbildung 1.19 zeigt die essentiellen Einzelkomponenten des Be-Ofens. Ein konischer Wolfram-Heizwendel (Kundenanfertigung der Firma Midwest Tungsten) wird über zwei 127 mm lange Cu-Stäbe einer elektrischen Vakuumdurchführung auf dem Endflansch eines justierbaren Balges befestigt. In das Innere des Wolframwendels wird ein  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tiegel gesteckt, der typischerweise mit 10 Streifen Be-Folie á  $2\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 30\text{ }\mu\text{m}$  (ca. 10 mg) befüllt wird. Der Ofen wird je nach experimentellen Erfordernissen im Bereich von 1000 K to 1300 K betrieben so dass eine Ofenfüllung im Durchschnitt 2-3 Jahre ausreicht.

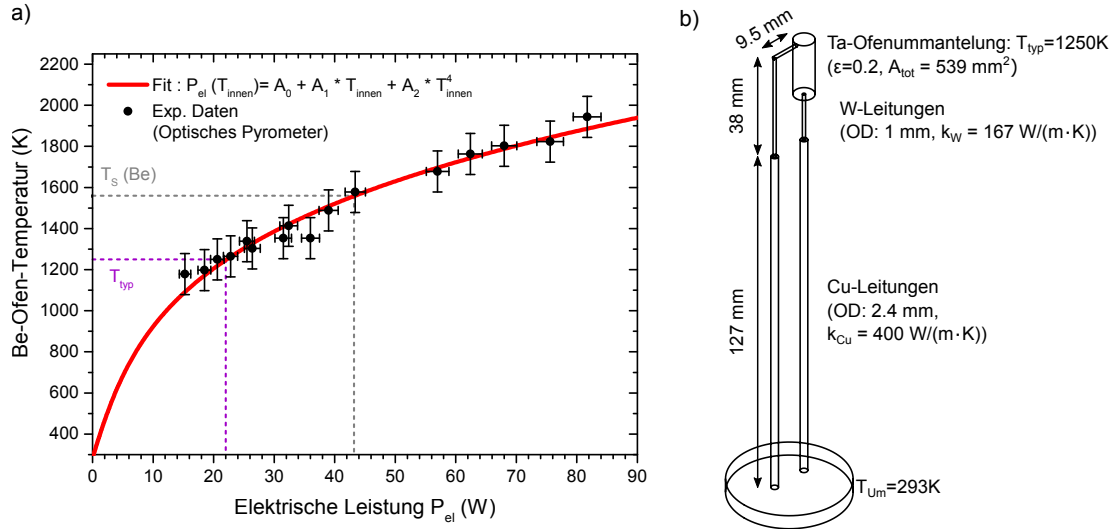
Typische Ofentemperaturen von 1250 K ( $977^\circ\text{C}$ ) führen in der Be-Ofenkammer, die mit zwei  $80\text{ l s}^{-1}$  Turbopumpen und einer nachgeschalteten Scroll-Pumpe evakuiert

wird, zu einem Druckanstieg von  $3 \times 10^{-9}$  mbar (Ofen kalt) auf  $2 \times 10^{-8}$  mbar. Da Be-Ofen- und Paulfallenkammer durch ein 6 mm langes Röhrchen mit 2 mm Innendurchmesser getrennt sind, ist bei typischen Be-Ofentemperaturen kein Druckanstieg in der Paulfallenkammer beobachtbar.

Bei den erreichten Vakua innerhalb der Be-Ofen-Kammer spielt Konvektion für den Wärmetransport keine Rolle mehr. Selbiger ist nur noch durch Wärmeleitung und Wärmestrahlung (engl.: Black Body Radiation, kurz BBR) gegeben. Ein direkter thermischer Kontakt zwischen dem heißen Be-Ofen und der Vakuumkammer ist ausschließlich durch die W-Füßchen des Wolframwendels in Serie mit den langen Cu-Stäbe mit Durchmesser 2.4 mm gegeben. Der obere Teil des Ofens (siehe Abb. 1.19), in dem sich der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Tiegel befindet, wird außerhalb der W-Wendel durch eine Hitzeummantelung, bestehend aus einem elektrisch isolierenden  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Röhrchen und einem Tantal-Zylinder, umgeben. Da zum einen Tantal mit  $\epsilon = 0.2$  gegenüber  $\text{Al}_2\text{O}_3$  mit  $\epsilon = 0.9$  eine geringere Emissivität besitzt und durch das Ta-Hitzeschild ein Teil der Wärmestrahlung wieder auf den Tiegel zurück reflektiert wird, kann eine bestimmte Ofentemperatur bei niedrigerer elektrischer Heizleistung erreicht werden. Im Abstand von 14.5 mm um das Ta-Hitzeschild befindet sich ein Aluminium-Hohlzylinder, der in Austrittsrichtung des Ofens auf 5 mm Innendurchmesser verjüngt wird. Dadurch entsteht ein Kontaminationsschutz der Vakuumkammer vor Be-Beschichtungen. Da zusätzlich dieser Al-Zylinder nur durch vier M4 Schrauben



**Abbildung 1.19:** Oberes Foto: Einzelkomponenten des Be-Ofens mit essentiellen Abmessungen und Materialbezeichnungen. Unteres Foto: zusammengebauter Be-Ofen, befüllt mit 10 Streifen Be-Folie á ungefähr  $2 \text{ mm} \times 10 \text{ mm} \times 30 \mu\text{m}$ , d.h ca. 10 mg. Tabelle: verwendete Materialien mit zugehörigen Schmelztemperaturen. Die übrigen Materialien können problemlos den, für die Sublimation von Beryllium im Vakuum notwendigen, Temperaturen, widerstehen.



**Abbildung 1.20:** a) Mit Hilfe eines optischen Pyrometers bestimmte Gleichgewichts-Temperatur im Ofeninneren in Abhängigkeit der elektrischen Leistung der resistiven Heizung. Optische Pyrometer können zur Temperaturbestimmung bis ca.  $2000^\circ\text{C}$  mit typ. Unsicherheiten von  $\pm 100^\circ\text{C}$  verwendet werden [161]. b) Vereinfachtes thermisches Modell des Be-Ofens (ohne äußeres Al-Hitzeschild), welches zur Konsistenzprüfung der Messwerte aus a) dient.

geringen Durchmessers mit der Vakuumkammer verbunden ist, wirkt er als weiteres Hitzeschild, so dass sich die Vakuumkammer kaum merklich bei heißem Be-Ofen erwärmt.

Um eine Kalibrationskurve für die Umrechnung von angelegter elektrischer Leistung ( $P_{el} = U \cdot I$ ) in erreichte Be-Ofentemperatur zu erhalten, wurde für verschiedene elektrische Leistungen die Be-Ofentemperatur mittels eines optischen Pyrometers (Mikro-Pyrometer der Pyro-Werk GmbH) bestimmt. Hier wird die Ofentemperatur berührungslos durch visuellen Vergleich mit der Glühfarbe einer kalibrierten Wolframlampe verglichen. Optische Pyrometer können zur Temperaturbestimmung bis ca.  $2000^\circ\text{C}$ , mit typ. Unsicherheiten von  $\pm 100^\circ\text{C}$ , verwendet werden [161]. Die mittels dieses Verfahrens erhaltenen Messpunkte sind in Abb. 1.20 a) dargestellt und wurden im Rahmen einer während dieser Promotionsforschung mitbetreuten Masterarbeit [162] aufgenommen.

Um die mit relativ großen Unsicherheiten aufgenommenen Datenpunkte der  $T$ - $P_{el}$ -Kennlinie des Ofens auf Plausibilität zu prüfen wurde ein vereinfachtes thermisches Modell des Be-Ofens aufgestellt und für die experimentell typische Ofentemperatur von  $T_{Ofen} = 1250\text{K}$  ausgewertet. Das vereinfachte Modell ist in Abbildung 1.20 b) skizziert. Die durch Wärmestrahlung abgegebene Leistung ist durch das Stefan-Boltzmann-Gesetz

$$P_{rad} = A_{tot} \epsilon \sigma T_{Ofen}^4 \quad (1.42)$$

gegeben. Dabei bezeichnet  $A_{tot}$  die Fläche des Strahlers, in diesem Fall die Fläche (plus Endkappen) des Ta-Hitzeschildes,  $\sigma$  ist die Stefan-Boltzmann-Konstante und  $\epsilon$  die Emissivität von Tantal bei der Ofentemperatur ( $\epsilon \approx 0.2$ ). Für die Gleichgewichtstemperatur  $T_{Ofen} = 1250 \text{ K}$  ergibt sich somit eine vom Be-Ofen abgestrahlte thermische Leistung von  $P_{rad} = 14.9 \text{ W}$ .

Die thermischen Verluste aufgrund der Wärmeleitung durch die elektrischen Zuleitungen lassen sich nach Fouriers Gesetz wie folgt berechnen:

$$P_{cond} = k A_{cond} (T_{Ofen} - T_{Um}) / L_{cond}. \quad (1.43)$$

Die Höhe der Verluste ist, neben der Temperaturdifferenz zwischen Ofentemperatur und Temperatur  $T_{Um}$  der Vakuumkammer, durch den thermischen Leitwert  $G = k \cdot A_{cond} / L_{cond}$  gegeben, der für einen Wärmeleiter konstanter Querschnittsfläche  $A_{cond}$  und Länge  $L_{cond}$  sonst nur noch von der materialspezifischen Wärmeleitfähigkeit  $k$  abhängt. Bei dem vorliegenden Aufbau handelt es sich um je eine Serienschaltung von W- und Cu-Leitung in Kombination mit der Parallelschaltung beider elektrischer Leitungsstränge. Dies führt zu dem Ausdruck

$$P_{cond} = (T_{Ofen} - T_{Um}) \cdot \left[ \frac{1}{\frac{1}{G_{Cu}} + \frac{1}{G_{1W}}} + \frac{1}{\frac{1}{G_{Cu}} + \frac{1}{G_{2W}}} \right] \quad (1.44)$$

für die thermischen Leistungsverluste durch Wärmeleitung beim Ofen-Modell nach Abb. 1.20 b). Für das vorliegende System ergeben sich die einzelnen thermischen Leitwerte zu  $G_{CU} = 14 \text{ mW K}^{-1}$ ,  $G_{1W} = 7.7 \text{ mW K}^{-1}$  bzw.  $G_{2W} = 2.8 \text{ mW K}^{-1}$ .

Bei einer Gleichgewichts-Ofentemperatur von  $T_{Ofen} = 1250 \text{ K}$  beträgt der Verlust durch Wärmeleitung folglich  $P_{cond} = 6.9 \text{ W}$ .

Da sich die elektrische Gesamtleistung nach dem vereinfachten thermischen Ofenmodell zu  $P_{el} = P_{rad}(T_{Ofen}) + P_{cond}(T_{Ofen}) - P_{rad}(T_0)$  ergibt, der letzte Beitrag aufgrund der  $T^4$ -Abhängigkeit der Strahlungsleistung und der relativ niedrigen Raumtemperatur des kalten Ofens jedoch vernachlässigbar klein ist, beträgt die elektrische Gesamtleistung nach den Gleichungen (1.42) und (1.43) bei  $T_{Ofen} = 1250 \text{ K}$  ca.  $P_{el} = 21.8 \text{ W}$ . Dies ist in guter Übereinstimmung mit der Fitkurve

$$P_{el}(T_{Ofen}) = A_2 \cdot T_{Ofen}^4 + A_1 \cdot T_{Ofen} - (A_2 \cdot T_{Um}^4 + A_1 \cdot T_{Um}) \quad (1.45)$$

an die Messwerte aus Abbildung 1.20.

### Ofen-Konzept und Be-Fluss

Das Be-Ofen-Konzept beruht auf dem Prozess der stark temperaturabhängigen Sublimation eines metallischen Festkörpers im Vakuum.

Die Anzahl der emittierten Be-Atome ergibt sich als Differenz zwischen der Sublimations- und Kondensationsrate von Be-Atomen [163]. Befindet sich ein Be-Festkörper z.B. im abgeschlossenen Vakuum, so kann ein Teil der Atome die Bindung im Festkörper überwinden und selbigen verlassen. Gleichzeitig wird bei Metallen jedes Be-Atom das auf die Festkörperoberfläche trifft kondensieren. Die kinetischen

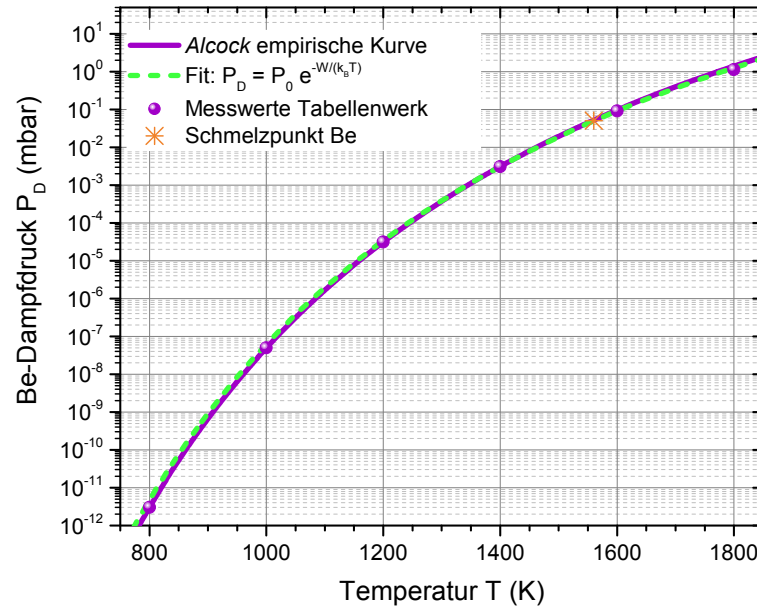
Energien der Atome im Festkörper können als Maxwell-Boltzmann verteilt angenommen werden. Wie viele Atome ausreichend hohe kinetische Energien besitzen, um den Festkörper zu verlassen, hängt somit stark von der Temperatur des Festkörpers ab.

Bei einem abgeschlossenen System entsteht durch die verdampften Atome im dynamischen Gleichgewicht der Sättigungs-Dampfdruck  $P_D$  über dem Festkörper. Dieser kann für die Sublimation aus dem Festkörper nach der Clausius-Clapeyron-Gleichung, welche die Steigung der Phasengrenzkurve durch das Verhältnis von Entropie- zu Volumensänderung beim Phasenübergang beschreibt, wie folgt geschrieben werden [167] :

$$P_D(T) = P_0 e^{-\frac{W}{k_B T}}, \quad (1.46)$$

dabei steht  $W$  für die stoffspezifische Sublimationswärme pro Teilchen und  $P_0$  ist leicht temperaturabhängig (Wurzelabhängigkeit, siehe [163]).

Abbildung 1.21 zeigt die starke Temperaturabhängigkeit des Be-Dampfdrucks. Die grüne, gestrichelte Kurve stellt einen Fit nach Gleichung (1.46) an fünf verfügbare Messwerte aus den Tabellenwerken [165, 166], unter Vernachlässigung der schwachen Temperaturabhängigkeiten von  $W$  und  $P_0$ , dar. Des Weiteren ist als lila, durchge-



**Abbildung 1.21:** Halblogarithmische Darstellung der Dampfdruckkurve von Beryllium in Abhängigkeit der Temperatur. Es sind zum einen die Kurve nach der empirischen, metallurgischen Formel (1.47), mit einer Genauigkeit von 5 % nach [164] und die Messwerte aus den Tabellenwerken [165, 166] dargestellt. Zum anderen ist in (grün, gestrichelt) die Fitkurve der Form  $P_D(T) = P_0 e^{-\frac{W}{k_B T}}$  an die Messwerte eingezeichnet. Zum Laden der Paulfalle mit  $\text{Be}^+$ -Ionen wurde der Be-Ofen auf Temperaturen im Bereich 1100 K–1400 K geheizt ( $T_{typ} = 1250$  K). In diesem Temperaturbereich wird der Be-Dampfdruck ausreichend genau, sowohl durch die Fitkurve als auch durch die empirische Formel, beschrieben.

zogene Kurve der Verlauf des Be-Dampfdrucks nach der empirischen Formel

$$\text{Log}(P_D(Pa)) = 13.048 - 17020 \times T^{-1} - 0.4444 \times \text{Log}T \quad (1.47)$$

aus [164] zu sehen. Diese Formel mit typischen Unsicherheiten von 5 % wurde für die folgenden Abschätzungen zu Be-Fluss bis hin zur Be<sup>+</sup>-Laderate verwendet.

Besteht eine Öffnung vom Be-Ofen aus zur umgebenden Vakuumkammer, so verlässt ein thermischer Be-Atomstrahl genau dann den Ofen, wenn der Druck in der Vakuumkammer wesentlich niedriger als der Be-Dampfdruck bei einer spezifischen Ofen-Temperatur ist.

Dies ist für typische experimentelle Bedingungen mit Vakua im Bereich  $3 \times 10^{-9}$  mbar– $2 \times 10^{-8}$  mbar ab einer Ofen-Temperatur von ca. 1000 K gegeben, wie ein Blick auf Abbildung 1.21 zeigt. Für typische Be-Ofen-Temperaturen zum Be<sup>+</sup>-Ionen Laden von 1250 K ist der Dampfdruck  $P_D(T = 1250 \text{ K})$  bereits größer als  $1 \times 10^{-4}$  mbar und die Be-Atome verlassen den Ofen.

Um einen kollimierten Atomstrahl erzeugen zu können, sollte der Be-Ofen im Bereich der so genannten freien Molekularströmung arbeiten. In diesem Bereich ist die mittlere freie Weglänge

$$l = \left( \sqrt{2\pi} n \sigma^2 \right)^{-1} \quad (1.48)$$

deutlich größer als die charakteristische Länge des Ofens, die hier dem Durchmesser des Ofen-Tiegels entspricht. In diesem Fall bewegen sich die Be-Atome entlang von geraden Strahlen, ausgehend von der Ofen-Öffnung, bis sie auf eine Wand treffen. Atom-Atom-Kollisionen können vernachlässigt werden und die Gesetze der kinetischen Gastheorie gelten. In Gleichung (1.48) bezeichnet  $\sigma$  den Wechselwirkungsquerschnitt für Atom-Atom-Kollisionen und ist damit für Beryllium durch den Be-Atomradius  $\sigma = 105 \text{ pm}$  gegeben.  $n$  ist die, bei einer bestimmten Temperatur, zu erwartende sublimierte Be-Teilchendichte. Diese lässt sich, wegen des wesentlich niedrigeren Drucks in der Vakuumkammer, nach dem idealen Gasgesetz durch

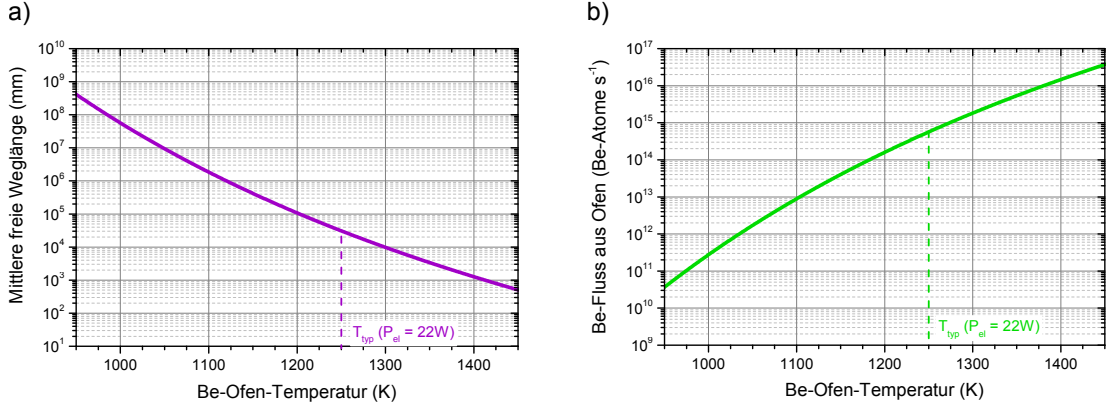
$$n = \frac{P_D(T)}{k_B T} \quad (1.49)$$

beschreiben.

Abbildung 1.22 a) zeigt die mittlere freie Weglänge für Be-Atome im Bereich typischer experimenteller Ofen-Temperaturen.  $l$  liegt für den dargestellten, experimentell relevanten Bereich, mindestens zwei Größenordnungen oberhalb der charakteristischen Länge des Ofen-Tiegels, der einen Innendurchmesser (vergleiche Abb. 1.19) von  $a = 1.6 \text{ mm}$  besitzt. So liegt die mittlere freie Weglänge bei einer typischen Ofentemperatur von 1250 K bei  $l = 30 \text{ m} \gg a = 1.6 \text{ mm}$ .

Die Flussdichte von Be-Atomen, ausgehend von einem Flächenelement  $dA$  des Ofens, in ein bestimmtes Raumwinkelement  $d\omega$ , das einen Winkel  $\alpha$  mit der Symmetrieachse des Ofens bildet, ist durch

$$\frac{d^3 N}{dA dt d\Omega} = N \frac{\bar{v} \cos(\alpha)}{V} \frac{1}{4\pi} \quad (1.50)$$



**Abbildung 1.22:** a) Mittlere freie Weglänge  $l$  in Abhängigkeit der Be-Ofen-Temperatur  $T$ .  $l$  liegt für den dargestellten, experimentell relevanten Bereich mindestens zwei Größenordnungen oberhalb der charakteristischen Länge des Ofen-Tiegels, der einen Innendurchmesser (vergleiche Abb. 1.19) von  $a = 1.6\text{ mm}$  besitzt. Damit gilt stets  $l \gg a$  und für die Abschätzungen der Be-Flussdichte kann man von einem so genannten molekularen Gasfluss ausgehen, bei dem Kollisionen zwischen den Be-Atomen keine Rolle spielen. b) Halblogarithmische Darstellung der Anzahl aus dem Ofen emittierter Be-Atome je Raumwinkelement, in Abhängigkeit der Ofen-Temperatur.

gegeben [154], wobei  $\bar{v}$  der mittleren Geschwindigkeit einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung entspricht. Integration über die gesamte Ofenfläche ( $A = \pi (a/2)^2$ , siehe Skizze 1.23) liefert zusammen mit dem Ausdruck

$$\bar{v} = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi M}} \quad (1.51)$$

für die mittlere Geschwindigkeit einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung und Verwendung von Gleichung (1.49) als Formel für den Fluss an Be-Atomen, der den Ofen je Raumwinkelement verlässt (Emissionscharakteristik analog zum Lambertschen Strahler):

$$\frac{d^2 N}{dt d\Omega} = A \frac{1}{\sqrt{2\pi M k_B T}} P_D(T) \frac{\cos(\alpha)}{\pi}. \quad (1.52)$$

Integration über  $\int \cos(\alpha) d\Omega = \pi$  über alle möglichen Austritts-Winkel beschreibt dann den kompletten Be-Fluss  $F_{Ofen}$  aus der Ofenöffnung in Vorwärtsrichtung:

$$F_{Ofen} = \frac{dN}{dt} = A \frac{1}{\sqrt{2\pi M k_B T}} P_D(T). \quad (1.53)$$

Für eine rein auf der kinetischen Gastheorie basierende Herleitung von Gleichung (1.53) sei auf [163] verwiesen.

Abbildung 1.22 b) zeigt die starke Abhängigkeit des Be-Flusses ( $[F] = \text{Be-Atome/s}$ ) von der Ofen-Temperatur. Bei einer typischen Temperatur von 1250 K ergibt sich ein Fluss von  $5.7 \times 10^{14} \text{ s}^{-1}$ . Für eine spezifische, für das Experiment erforderliche

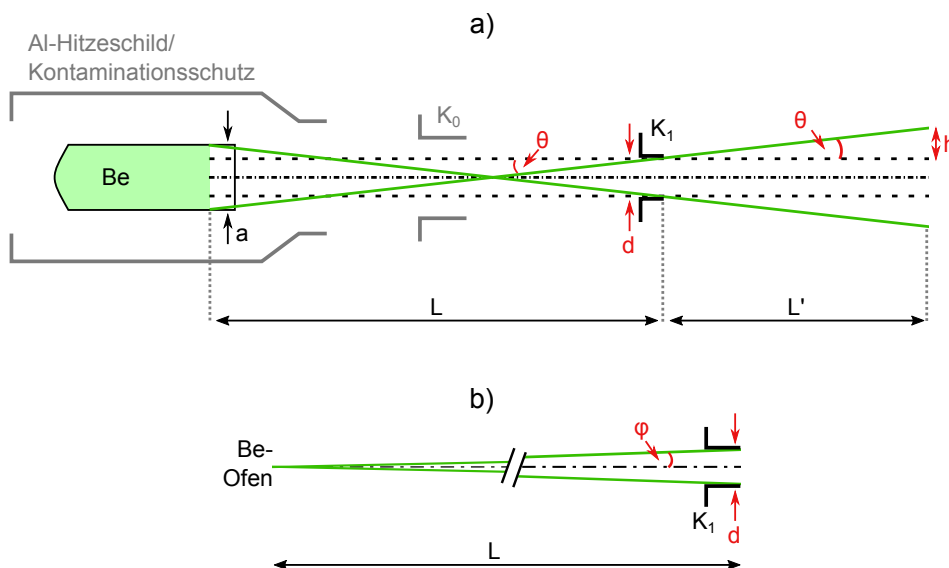
Ofen-Temperatur lässt sich aus Gleichung (1.53) die Massenverlustrate durch Division mit der Avogadro-Konstanten und Multiplikation mit der molaren Be-Masse bestimmen. Sie ist für den experimentell relevanten Temperaturbereich in Abbildung 1.29 dargestellt.

### Ausdehnung und Be-Fluss des kollimierten Atomstrahls

Im experimentell relevanten Temperaturbereich können Atom-Atom-Kollisionen vernachlässigt werden, da die mittlere freie Weglänge wesentlich größer ist als der Durchmesser des Ofentiegels. Die Atome breiten sich geradlinig aus, bis sie auf eine Wand treffen. Da Beryllium, wie die meisten Metalle, einen “sticking“-Koeffizient von Eins hat, d.h. bei Auftreffen auf eine Wand dort adsorbiert bleibt, kann ein thermischer Be-Atomstrahl geformt und mittels Blenden bzw. Röhrchen kollimiert werden.

Im vorliegenden Experiment gibt es als Kontaminationsschutz und zur Realisierung des differentiellen Pumpens zwischen Be-Ofen- und Paulfallenkammer mehrere Blenden mit verschiedenen Durchmessern, wie in Abbildung 1.23 a) gezeigt.

Das, den Be-Ofen umgebende, Al-Hitzeschild hat in Paulfallen-Richtung einen Öffnungsdurchmesser von 5 mm, das Röhrchen K0, zum Trennen der beiden Vakuum-



**Abbildung 1.23:** Schematische Skizzen (nicht maßstabsgetreu) einfacher, geometrischer Überlegungen zur: a) oberen Abschätzung der Gesamtausdehnung  $2h + d$  des neutralen Be-Atomstrahls im Paulfallenzentrum bzw. zwischen den Paulfallenelektroden im Abstand  $L'$  vom limitierenden Kollimationsröhrchen K1 vor der Falle. b) Bestimmung des Kollimationswinkels  $\varphi = \arctan(d/(2L))$  unter Annahme einer punktförmigen Be-Quelle.

Die Abschätzung aus a) wird zur Überprüfung der Kollisionsfreiheit zwischen Be-Atomstrahl und Paulfallenelektroden, sowie zur Konsistenzprüfung des auf Seite 63 bestimmten Wechselwirkungsvolumens benötigt, während b) der Abschätzung des von K1 ausgeschnittenen Raumwinkелеlementes dient.



kammern für das differentielle Pumpen, ist mit einem Innendurchmesser von 2 mm dimensioniert, während die letzte Kollimationsblende vor den Paulfallenelektroden einen Innendurchmesser von  $d = 1$  mm besitzt und damit für die Gesamtkollimation des Be-Atomstrahls die limitierende Blende darstellt.

Die näherungsweise Raumwinkel-Selektion  $\pi (d/(2L))^2 \approx \pi (\varphi)^2$  durch die limitierende Apertur des Kollimationsröhrchens K1 mit Durchmesser  $d = 1$  mm, welches sich im Abstand  $L \approx 800$  mm von der Be-Folie im Ofen befindet, bedingt den Fluss an Be-Atomen in der Paulfalle  $F_{Falle}$  zu (siehe auch: [147, 154]):

$$F_{Falle} = A \frac{1}{\sqrt{2\pi M k_B T}} P_D(T) \left( \frac{d/2}{L} \right)^2. \quad (1.54)$$

Hierbei konnte die Be-Quelle als punktförmig angenommen werden, da die Blende K1 in einem Abstand  $L$  vom Ofen positioniert ist, der wesentlich größer als die Durchmesser von Blende K1 und Be-Ofen ist:  $L \gg a, d$ .

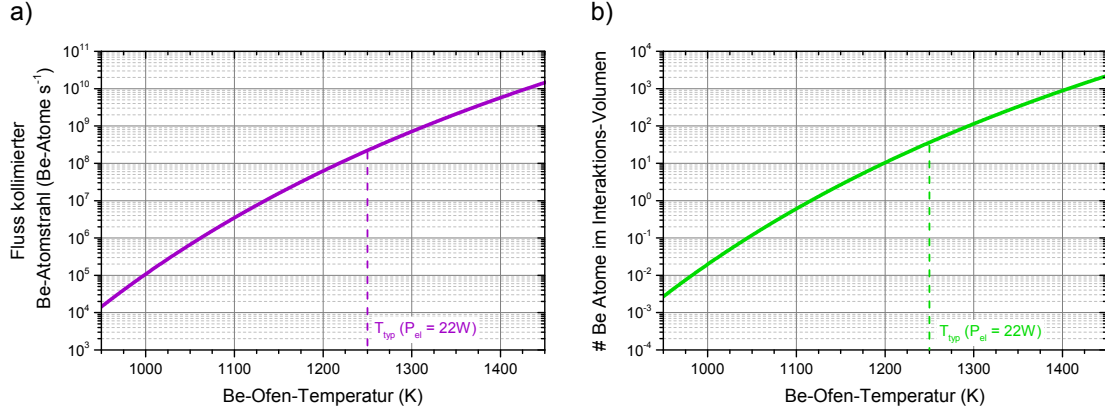
Damit lässt sich der Kollimationsgrad des Be-Atomstrahls über den Kollimationswinkel  $\varphi$  aus Abbildung 1.23 b) quantifizieren und man erhält  $\varphi \approx 0.6$  mrad. Diese Dimensionierung von  $L$  und  $a$  bringt jedoch auch die Notwendigkeit der genauen Ausrichtung des Be-Ofens bzgl. des Paulfallenzentrums mit sich. Wie selbige realisiert wurde, wird im nachfolgenden Unterabschnitt zur Bestimmung des Interaktions-Volumens zwischen Atomstrahl und Photoionisationslaser gezeigt.

Da Photoionisationslaser- und Be-Atomstrahl einander unter  $90^\circ$  im Paulfallenzentrum kreuzen, können Dopplerverschiebung und -verbreiterung für die jeweiligen Abschätzungen vernachlässigt werden. Die Dopplerverbreiterung aufgrund des transversalen Anteils der ursprünglich Maxwell-Boltzmann verteilten Geschwindigkeiten skaliert mit  $\sin(\varphi) \approx 6 \times 10^{-4}$ , wodurch die Standardabweichung der Dopplerverbreiterung in der Größenordnung von 3 MHz liegt und damit kleiner als die natürliche Linienbreite des angeregten Zwischenzustandes im Be-Atom bzw. als die PI-Laserbreite ist.

Für eine obere Abschätzung des Durchmessers  $D_{Trap}$  des Be-Atomstrahls im Fallenzentrum, sowie im Bereich der hinteren Fallenelektroden  $D_{Elk}$ , wird der Be-Ofen nicht als Punktquelle betrachtet. Die Skizze zu den geometrischen Überlegungen der entsprechenden Abschätzungen befindet sich in Abbildung 1.23 a). Der Winkel  $\theta$ , der zusammen mit dem Durchmesser des Kollimationsröhrchens K1 die Ausdehnungen  $D_{Trap}, D_{Elk}$  bedingt, kann nach  $\tan(\theta) = (a/2 + d/2)/(L)$  berechnet werden und beträgt  $\theta \approx 1.6$  mrad. Aus dieser Beziehung folgt direkt der Zusammenhang zur Berechnung der Ausdehnungen des kollimierten Be-Atomstrahls nach:

$$D_i = d + \frac{L'}{L}(a + d). \quad (1.55)$$

Der Abstand zwischen dem letzten Kollimationsröhrchen K1 und dem Paulfallenzentrum beträgt 61 mm. Dies hat nach Gleichung (1.55)  $D_{Trap} = 1.2$  mm zur Folge. Da es nur zu einer maximalen Strahlaufweitung um 16 % kommen kann, wird selbige für die weiteren Abschätzungen, insbesondere des Interaktionsvolumens und der Photoionisationsrate, vernachlässigt. Vielmehr wird der kollimierte Be-Atomstrahl



**Abbildung 1.24:** Halblogarithmische Darstellung des Flusses neutraler Be-Atome innerhalb der Paulfalle (a)), sowie der im Wechselwirkungsvolumen (siehe Gleichung (1.58) zwischen Be-Atomstrahl und Photoionisationslaser vorhandenen Anzahl an Be-Atomen (b)).

im Fallenzentrum als zylinderförmig mit Durchmesser 1 mm angenommen. Dies ist für die Abschätzungen zur Photoionisationsrate gerechtfertigt, da aufgrund des kleinen Kollimationswinkels  $\varphi$  auch die Be-Atome mit leicht transversalen Geschwindigkeitskomponenten noch nennenswert resonant angeregt werden und zusätzlich mehr Atome im Kernbereich als in den Randbereichen des Atomstrahls vorhanden sind. Des Weiteren liefert Gleichung (1.55) die Erkenntnis, dass der Be-Atomstrahl im gesamten Elektroden-Bereich der Paulfalle einen Durchmesser von  $D_{Elk} < 1.3 \text{ mm}$  besitzt. Da der minimale Abstand zweier benachbarter Elektrodenstäbe der Paulfalle 2.6 mm beträgt, kann es folglich zu keiner Ablagerung der neutralen Be-Atome auf den Paulfallen-Elektroden kommen.

Die Anzahl an Be-Atomen, welche die Paulfalle je Sekunde durchqueren, ist in Abbildung 1.24 a) gezeigt und beträgt bei einer typischen Ofentemperatur von 1250 K ca.  $2.2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ .

Mittels Gleichung (1.54) erhält man, bei Kenntnis des Wechselwirkungsvolumens  $V_{WW}$  zwischen Be-Atomstrahl und PI-Laser, nach  $N_{Be}(V_{WW}, T) = F_{Falle} V_{WW} / (A\bar{v})$  direkt eine Beziehung für die, zu jedem Zeitpunkt im Wechselwirkungsvolumen vorhandene, Anzahl an Be-Atomen:

$$N_{Be}(V_{WW}, T) = \frac{1}{4} \left( \frac{d/2}{L} \right)^2 \frac{P_D(T) V_{WW}}{k_B T}. \quad (1.56)$$

Die zu jedem Zeitpunkt im Interaktionsvolumen, als Targets für die resonanzverstärkte Zwei-Photonen-Ionisation, zur Verfügung stehende mittlere Anzahl an neutralen Be-Atomen ist in Abhängigkeit der Temperatur in Abbildung 1.24 b), für ein fixes Wechselwirkungsvolumen, dargestellt. Bei einer typischen Ofen-Temperatur von 1250 K stehen ca. 36 Be-Atome zu jedem Zeitpunkt für die Photoionisation durch Laserphotonen bei 235 nm zur Verfügung.

Das Wechselwirkungsvolumen hängt neben den Abmessungen des Be-Atomstrahls im Paulfallenzentrum zusätzlich vom Fokussdurchmesser des Photoionisationslasers

ab und kann für das Laden von  $\text{Be}^+$ -Ionen im Rahmen der hier vorgestellten Experimente als konstant angesehen werden.  $V_{WW}$  wird im nächsten Unterabschnitt, in dem auch die Erzeugung der Überlappung zwischen Laser und Atomstrahl diskutiert wird, berechnet.

### Wechselwirkungsvolumen zwischen Be-Atomstrahl und Ionisationslaser

Um das Wechselwirkungs-Volumen zwischen Be-Atomstrahl und Photoionisationslaser kontrolliert zu erzeugen und charakterisieren zu können, werden beide Strahlen auf das Fallenzentrum justiert. Dabei muss zusätzlich gewährleistet sein, dass sich beide Strahlen so gut wie möglich unter  $90^\circ$  kreuzen (engl.: crossed-beam method) um Dopplerverschiebung und -verbreiterung zu minimieren.

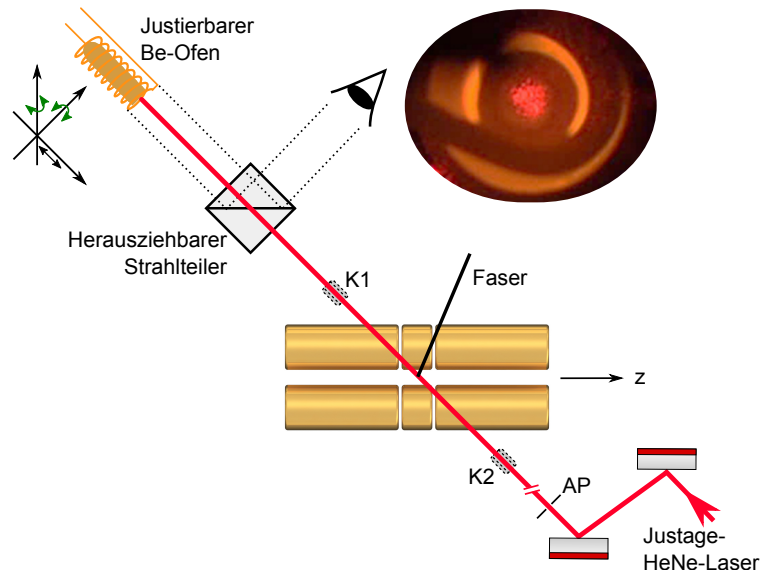
In Abbildung 1.25 sind die essentiellen Komponenten des Aufbaus für das Ausrichten des Be-Atomstrahls dargestellt. Der Be-Ofen ist auf dem hinteren, justierbaren Flansch eines verformbaren Balges zentral montiert. Damit lässt sich der Ofen unabhängig voneinander um die vertikale und horizontale Achse verkippen.

Zum Ausrichten des Ofens wird zum einen ein unpolarisierender Strahlteilerwürfel in den Be-Atomstrahlengang eingeschoben und der Ofen so geheizt, dass der Wolframwendel anfängt orange zu glühen. Zum anderen richtet man einen Justage-HeNe-Laser mit  $1/e^2$ -Strahldurchmesser von ca. 0.8 mm mittig durch die Kollimationsröhrchen K1, K2 und die Apertur AP, mit je Innendurchmesser 1 mm, auf die Faser im Fallenzentrum aus. Da die iCCD des Abbildungssystems auch bei 632 nm eine nennenswerte Quanteneffizienz besitzt (siehe Abb. 1.17), kann das mittige Treffen der Faserspitze durch Beobachtung des CCD-Bildes der Faser gewährleistet werden. Anschließend wird der Be-Ofen so verschoben und verkippt, dass sich bei visueller Betrachtung durch den Strahlteilerwürfel der HeNe-Laserspot im Zentrum des  $\text{Al}_2\text{O}_3$  Tiegels befindet (siehe Foto in Abb. 1.25).

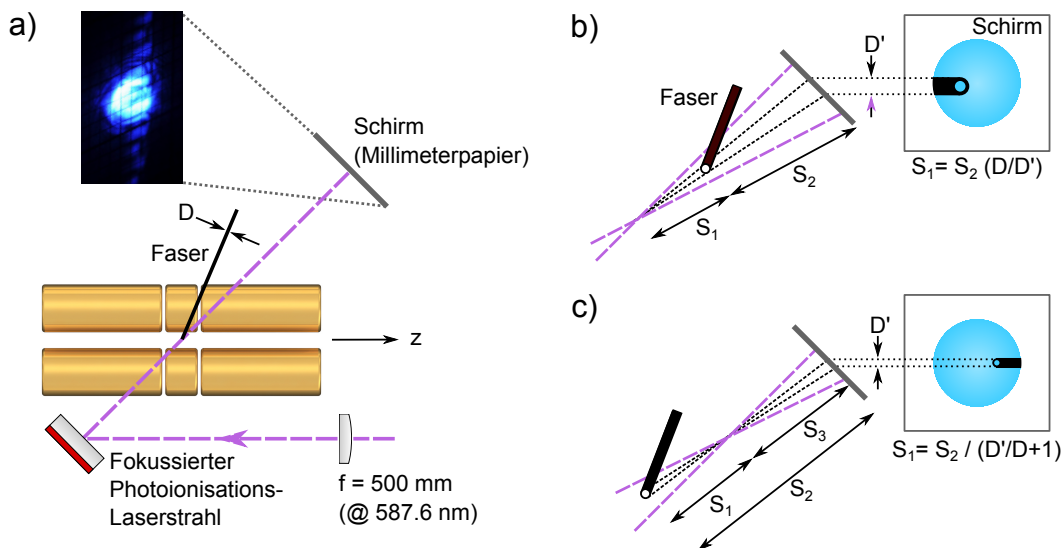
Wird anschließend der Strahlteilerwürfel aus dem Be-Atomstrahlengang herausgezogen, so ist selbiger grob ausreichend genau auf das Fallenzentrum ausgerichtet, um  $\text{Be}^+$ -Ionen produzieren zu können. Eine feinere Ausrichtung des Ofens erfolgt durch Maximierung der  $\text{Be}^+$ -Ionenladrate. Nachdem der Ofen bei der ersten Inbetriebnahme auf diese Weise ausgerichtet war, wurde zusätzlich die Apertur AP in den Strahlengang des HeNe-Lasers eingebaut. Beim nächsten Neubefüllen des Ofens war somit eine Ausrichtung des Ofens mittels HeNe-Lasers auf  $\pm 0.4$  mm genau möglich und der Ausrichteschritt mittels Maximierung der Photoionisationsrate entfiel, da der Innendurchmesser des Be-Ofens mit 1.6 mm größer ist als der des Kollimationsröhrchens K1 mit 1.0 mm.

Das oben erläuterte Ausrichtungsverfahren des Be-Atomstrahls stellt, insbesondere unter Berücksichtigung des Zeitintervalls zwischen zwei Neubefüllungen des Ofens von ca. 2-3 Jahren, eine effiziente Variante der Herstellung der Überlappung zwischen Atomstrahl und Photoionisationslaser dar.

Die Methode zur Erzeugung und Charakterisierung der Überlagerung von Photoionisationslaser mit dem Weg des Be-Atomstrahls ist in Abbildung 1.26 gezeigt. Zur Erhöhung der Photoionisationsrate wird der Photoionisationslaserstrahl so fokussiert, dass der Fokus um die Strecke A hinter dem Fallenzentrum (in Abb. 1.26



**Abbildung 1.25:** Skizze zum Ausrichten des Be-Ofens - und damit des Be-Atomstrahls - auf das Fallenzentrum mit Hilfe eines Justage HeNe-Lasers. AP - Apertur mit Innendurchmesser 1 mm, K1 und K2 - Kollimationsröhrchen mit je 1 mm Innendurchmesser. Der Minimalabstand zwischen den Röhrchen beträgt 122 mm, der Abstand von AP zur Faser im Fallenzentrum ist ca. 300 mm groß. Beachte das sichtbare Specklemuster des HeNe-Lasers im Foto rechts oben. Beim Strahlteilerwürfel ist je nur einer der möglichen Strahlengänge eingezeichnet.



**Abbildung 1.26:** Überlegungen im Rahmen der geometrischen Strahlenoptik zur Ausrichtung bzgl. des Fallenzentrums und Fokussierung des Photoionisations-Laserstrahls mit  $\lambda \approx 235$  nm. Das Foto links oben in Grafik a) zeigt die Fluoreszenz von Molekülen im Millimeterpapier, die durch den UV-Ionisationslaser angeregt werden. Zu sehen ist zum einen das durch die Faser erzeugte Beugungsmuster, sowie, innerhalb des kreisförmigen Fluoreszenzmusters, der Schatten der Faser. Der Durchmesser  $D$  des Faserschattens kann somit zu 1.1(1) mm bestimmt werden, während der reale Faserdurchmesser 106(3)  $\mu$ m beträgt.  $S_2$  ist 61.5(5) cm und  $S_1$  kann somit durch einfache geometrische Überlegungen zu 54(5) mm bestimmt werden.

gekennzeichnet durch die Faserspitze) liegt.

Der  $1/e^2$ -Strahldurchmesser des näherungsweise kollimierten PI-Laserstrahls vor der Quarzglas-Fokussierlinse beträgt 3.2 mm. Die Linse (LA4184UV von Thorlabs) hat bei 587.6 nm eine spezifizierte Brennweite von  $f = 500$  mm. Dies lässt sich bei Brechungsindizes von  $n(587.6 \text{ nm}) = 1.4585$  und  $n(235 \text{ nm}) = 1.5166$  mit  $f(\lambda_1) = f(\lambda_2) \cdot (n(\lambda_2) - 1)/(n(\lambda_1) - 1)$  umrechnen auf eine Brennweite von  $f = 444$  mm bei 235 nm.

Mittels Gaußscher Strahlenoptik ergibt sich somit im Fokus ein minimaler  $1/e^2$ -Strahldurchmesser  $2w$  von 42  $\mu\text{m}$ . Erfolgt die Überlappung zwischen Atom- und Laserstrahl am Rande des Atomstrahls, so ist das Vorhandensein einer nennenswerten  $\text{Be}^+$ -Ionenladerate stark gekoppelt an die Drift- und Vibrationsfreiheit des PI-Laserstrahls. Um hier größeren experimentellen Spielraum zu haben und nicht während eines Experimentiertages den Laserstrahl nachjustieren zu müssen wird der Fokus um die Strecke  $F$  aus dem Fallenzentrum herausgeschoben.

Dafür wird zuerst der Laser mittels zweier Spiegel auf die Faserspitze, die sich bei hineingeschobener Faser im Fallenzentrum befindet, so ausgerichtet, dass er auf der gegenüberliegenden Seite aus der Vakuumkammer der Paulfalle austritt. Dabei wird er durch die Fluoreszenz von Molekülen eines Blattes Millimeterpapiers, die durch das UV Licht des PI-Lasers angeregt werden, sichtbar gemacht.

Das Millimeterpapier ist im Abstand  $S_2 = 61.5(5)$  cm vom Fallenzentrum entfernt, orthogonal zum Laserstrahl, angebracht. Als nächstes wird die Linse unter der Bedingung minimaler transversaler Verschiebung des Laserstrahls in den Strahlengang eingebracht und kollinear zum Laserstrahl so verschoben, bis der Abstand  $S_1$  einen gewünschten Wert einnimmt. Befindet sich der Fokus hinter der Faserspitze, so schiebt sich der Schatten der Faser von rechts in den runden Laser-Fluoreszenzspot auf dem Millimeterpapier hinein. Ein entsprechendes Foto ist in Abb. 1.26 a) integriert. Mittels einfacher geometrischer Überlegungen ergibt sich der Versatz des Fokus für den genannten Fall (Grafik c) in Abb. 1.26) zu

$$S_1 = \frac{S_2}{D'/D + 1}. \quad (1.57)$$

$D$  ist dabei der reale Faserdurchmesser von 106(3)  $\mu\text{m}$ , während  $D'$  für den Durchmesser des Schattens der Faser auf dem Millimeterpapier steht (hier: 1.1(1) mm). Für die Experimente dieser Arbeit wurde somit  $S_1$  zu 54(5) mm gewählt.

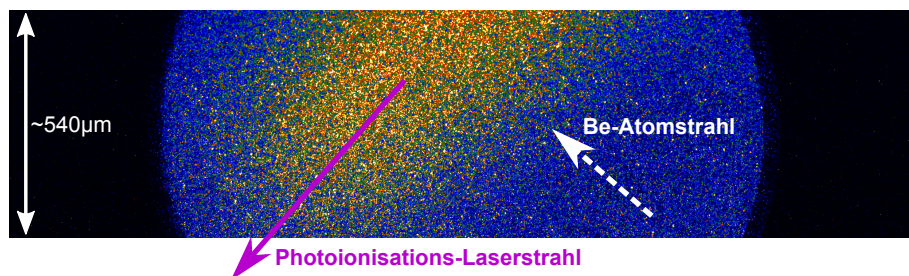
Damit ergibt sich ein  $1/e^2$ -Strahldurchmesser des Photoionisationslasers im Bereich des Atomstrahl-Zylinders von 530(40)  $\mu\text{m}$ . Die Änderung des Strahldurchmessers im Fallenzentrum über die Ausdehnung von  $D_{\text{Trap}} = 1$  mm des Atomstrahls beträgt 8  $\mu\text{m}$ . Damit kann der Strahldurchmesser ( $2w$ ) über die Ausdehnung des Atomstrahls als konstant mit einem Wert von

$$(2w) = 530(40) \mu\text{m}$$

angesehen und für die folgenden Abschätzungen verwendet werden.

Das Wechselwirkungsvolumen  $V_{WW}$  zwischen kollimiertem Be-Atomstrahl mit Durchmesser  $d_{\text{Be}} = 1$  mm und den Photonen des Ionisationslasers beträgt somit

$$V_{WW} = \pi \omega^2 d_{\text{Be}} = 0.22 \text{ mm}^3 \quad (1.58)$$



**Abbildung 1.27:** CCD-Aufnahme der Fallenregion mit dem Abbildungssystem Variante A, ohne eingestrahnten Kühlaserstrahl. Zu erkennen ist das Fluoreszenzlicht bei 235 nm der durch den PI-Laser angeregten Be-Atome.

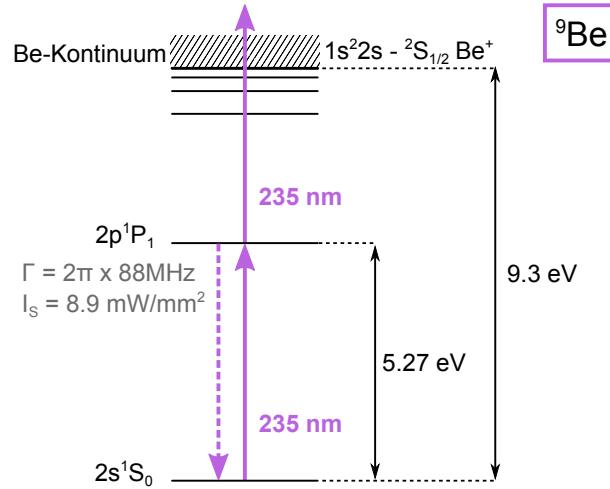
und die Be-Atome brauchen bei einer mittleren Geschwindigkeit von  $1715 \text{ m s}^{-1}$  (Ofentemperatur von 1250 K) ungefähr 309 ns um das Wechselwirkungsvolumen zu durchqueren.

Die Lebensdauer des angeregten Zwischenzustandes im Be-Atom ist mit  $\tau \approx 1.8 \text{ ns}$  wesentlich kürzer als die benötigte Zeit zum Durchqueren des Interaktionsvolumens. Bis das angeregte Be-Atom ionisiert wird oder den Laserstrahl verlässt, kann es spontan ein Photon emittieren und zum Grundzustand zurückkehren. Da unter typischen experimentellen Bedingungen nur ein Bruchteil der Be-Atome ionisiert wird, ergibt sich ein deutliches Fluoreszenzsignal bei 235 nm, welches durch die Optik auf die CCD-Kamera abgebildet wird. Diese ist bei 235 nm so empfindlich (siehe Abbildung 1.17 zur wellenlängenabhängigen Quanteneffizienz der CCD), dass das Interaktionsvolumen beobachtet und damit die Ausrichtung von Laser und Atomstrahl fein justiert werden kann (siehe Abbildung 1.27 für einen typischen Ausgangszustand nach Ofen-Neubefüllung).

### 1.5.2 Resonanzverstärkte Zwei-Photonen-Ionisation von Be-Atomen

Das für die Photoionisation relevante Termschema von neutralem Beryllium ist in Abbildung 1.28 zu sehen. Analog zu Helium gibt es im Be-Atom ein Singulett- und Triplettssystem, zwischen denen keine starken E1-Übergänge stattfinden können. Der niedrigste angeregte Zustand des Singulettsystems ist das  $2p \ ^1P_1$  Niveau, welches 5.27 eV oberhalb des Grundzustandes liegt, mit selbigem über einen elektrisch dipolerlaubten Übergang verbunden ist und eine Lebensdauer von  $\tau = 1.8 \text{ ns}$  besitzt. Die Ionisationsenergie des Be-Atoms beträgt 9.3 eV.

Wie skizziert reicht damit die Energie von zwei 235 nm Photonen aus, um die Energiedifferenz zwischen Grundzustand und Ionisations-Kontinuum zu überbrücken. Damit kann man den, gegenüber nicht-resonanter Zwei-Photonen-Ionisation, um Größenordnungen höheren Wirkungsquerschnitt [168, 169] der resonanzverstärkten Zwei-Photonen-Ionisation nutzen, indem sequentiell zuerst der intermediäre Zustand  $2p \ ^1P_1$  angeregt und anschließend von dort das aktive Elektron in die Kontinuumszustände angehoben wird.



**Abbildung 1.28:** Für die resonanzverstärkte Zwei-Photonen-Ionisation relevantes Termschema des Singulett-Systems atomaren Berylliums. Der Photoionisationslaser mit  $\lambda = 235 \text{ nm}$  kann ein Elektron zunächst resonant zum intermediären Niveau  $2p^1P_1$  anregen. Um von dort aus das gebundene Elektron in einen freien Zustand im Kontinuum anzuheben wäre ein Photon mit nur 307 nm nötig, so dass dieser zweite Schritt nicht resonant stets durch die Photonen des CW-Photoionisationslasers erfolgen kann. Es wird folglich nur ein Laser für den Photoionisations-Prozess benötigt.

### Photoionisationsrate

Formal handelt es sich bei dem hier verwendeten Photoionisations-Schema um einen Multiphotonen-Absorptionsprozess, bei dem das Atom ionisiert werden kann, obwohl die Energie eines einzelnen Photons des schmalbandigen Lasers kleiner als das Ionisationspotential des Be-Atoms ist.

Die Übergangswahrscheinlichkeit vom Grundzustand in den Kontinuumszustand kann somit für den Zwei-Photonen Prozess im schwachen Laserfeld (Keldysh-Parameter  $\gamma^2 \gg 1$  [170]) mittels Störungsrechnung zweiter Ordnung berechnet werden. Die Übergangswahrscheinlichkeit wird hierbei als Überlappung zwischen Grund- und Kontinuumszustand, summiert über alle möglichen Zwischenzustände, dargestellt, wobei zusätzlich durch die Differenz zwischen Laserlicht und Energiedifferenz zwischen den jeweiligen Zuständen dividiert wird. Ist das Laserlicht in Resonanz mit der Energiedifferenz zwischen Grundzustand und einem intermediären Zustand (hier  $2p^1P_1$ ), so dominiert der Term des resonanten Zwischenzustandes die Summe. Diese kann folglich durch einen einzelnen Term repräsentiert werden, der sich multiplikativ aus der Anregungswahrscheinlichkeit in den Zwischenzustand und der Ionisationswahrscheinlichkeit dieses Zwischenzustandes zusammensetzt [171, 172].

Betrachtet man die Zustände des  $2s^1S_0 \longleftrightarrow 2p^1P_1$  Übergangs näherungsweise als Zwei-Niveau-System, so ergibt sich unmittelbar folgender Ausdruck für die resonanz-

verstärkte Zwei-Photonen-Ionisation des Be-Atoms (analog zu [147, 155, 171, 173]):

$$\frac{dN_{Be^+}}{dt} = \frac{I}{hc/\lambda} \sigma_{1P_1 \rightarrow \infty} \cdot \frac{s/2}{(1+s) + (2\Delta/\Gamma)^2} \cdot N_{Be}(V_{WW}, T) . \quad (1.59)$$

Dabei beschreibt der erste Faktor  $I \sigma_{1P_1 \rightarrow \infty} / (hc/\lambda)$  die Rate der Einzel-Photonen-Ionisation des angeregten  $2p^1P_1$  Zustandes, mit einem in [174] theoretisch berechneten Wirkungsquerschnitt von  $\sigma_{1P_1 \rightarrow \infty} = 22 \text{ Mb} \hat{=} 22 \times 10^{-22} \text{ m}^2$  bei einer Photonenenergie von 5.27 eV.

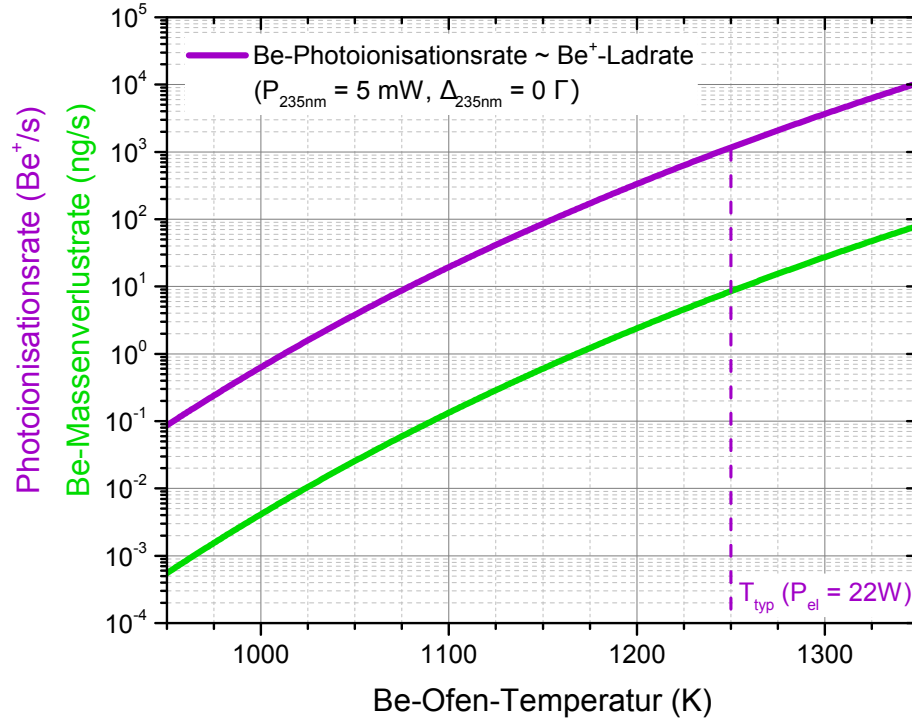
Die Kombination der übrigen Faktoren aus Gleichung (1.59) gibt die Anzahl der im Mittel zur Verfügung stehenden, angeregten Target-Be-Atome für den Prozess der Einzel-Photonen-Ionisation an. Diese ist gleichbedeutend mit der mittleren Anzahl im Wechselwirkungsvolumen zwischen Be-Atomstrahl und Photoionisationslaser vorhandenen Be-Atome, die sich bei einer spezifischen Laserleistung und -verstimmung im angeregten Zwischenzustand befinden.

Bei der Motivation von Gleichung (1.59), die auch anschaulich aus der Definition des Wirkungsquerschnitts für die Einzel-Photonen-Ionisation des angeregten  $2p^1P_1$  Zustandes abgeleitet werden kann, wurde der Einfluss der Polarisation des Photoionisationslasers vernachlässigt. Dies sollte nach [168, 169] jedoch nur einen Faktor der Größenordnung 1 in Gleichung (1.59) ausmachen.

Mit Hilfe von Gleichung (1.59) kann nun die, für eine bestimmte Be-Ofen-Temperatur, mit dem vorhandenen experimentellen Aufbau erreichbare Produktionsrate von  $Be^+$ -Ionen, abgeschätzt werden. Dazu wird das Gaußsche Strahlprofil des Photoionisationslasers als Top-Hat-Profil mit homogener Intensität  $I = P/(\pi\omega^2)$  angenähert. Für experimentell typische Laserparameter von  $P_{235nm} = 5 \text{ mW}$  und  $\Delta = 0\Gamma$  sowie für einen  $1/e^2$  Strahldurchmesser von  $530 \mu\text{m}$  erhält man die in Abbildung 1.29 gezeigte obere Kurve, welche die Temperaturabhängigkeit der mittels resonanzverstärkter Zwei-Photonen-Ionisation erzeugter  $Be^+$ -Ionen darstellt. In der selben Abbildung ist die Massenverlustrate des Be-Vorrats aus dem Ofen eingetragen. Der Vergleich beider Kurven ermöglicht eine Einschätzung, welche Wahl der Ofen-Temperatur für das jeweilige Experiment sinnvoll ist. Zum Laden größerer  $Be^+$ -Coulomb-Kristalle bietet sich z.B. eine typische Ofen-Temperatur von 1250 K an. Unter diesen Betriebsbedingungen wurde die elektrische Leistung des Ofens, und damit verbunden dessen Temperatur, zwischen den Ladevorgängen reduziert, um die Langlebigkeit einer Ofenfüllung zu gewährleisten.

Die Photoionisationsrate aus Abbildung 1.29 stellt eine obere Abschätzung für die  $Be^+$ -Laderate dar, da nicht jedes im Fallenbereich erzeugte  $Be^+$ -Ion auch tatsächlich stabil gespeichert werden muss. Für typische Ofen-Temperaturen  $\leq 1250 \text{ K}$  und gleichzeitige Laserkühlung der erzeugten  $Be^+$ -Ionen ist davon auszugehen, dass die  $Be^+$ -Laderate näherungsweise durch die Photoionisationsrate gegeben ist. Dafür spricht, dass für diese Ofen-Temperaturen die Periodendauer  $T_{RF}$  der RF-Paulfallenspannung mit 250 ns deutlich kürzer ist als die Zeit von 350 ns, die ein Be-Atom im Mittel benötigen würde, um das Wechselwirkungsvolumen, in Mitten des Fallenzentrums, zu durchqueren. Zusätzlich ist der Abstand zwischen äußerem Rand des Wechselwirkungsvolumens  $V_{WW}$  und den Fallenelektroden von der Größen-



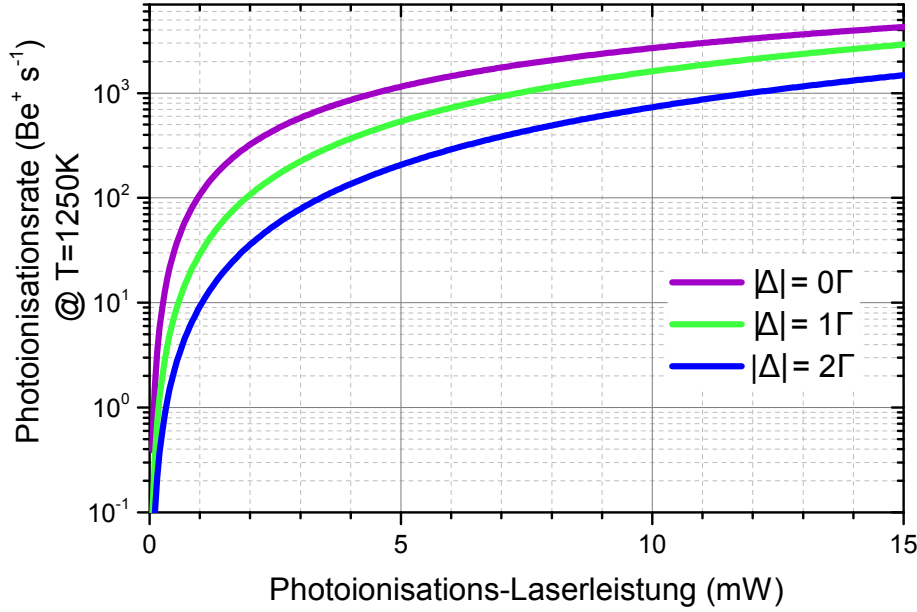


**Abbildung 1.29:** Die lila Kurve zeigt die abgeschätzte Rate der mittels resonanzverstärkter Zwei-Photonen-Ionisation erzeugten  $\text{Be}^+$ -Ionen, die, bei zeitgleich eingestrahltm Kühllaser, näherungsweise der  $\text{Be}^+$ -Laderate in die Paulfalle entspricht. Die Photoionisationsrate wird, in Abhängigkeit der Ofentemperatur, für Laserparameter von  $P_{235\text{nm}} = 5 \text{ mW}$  und  $\Delta = 0\Gamma$  sowie für einen  $1/e^2$  Strahldurchmesser von  $530 \mu\text{m}$  dargestellt. Die zugehörige, berechnete Be-Massenverlustrate wird durch die grüne Kurve repräsentiert und beträgt, für typische Ofentemperaturen von  $T_{\text{typ}} = 1250 \text{ K}$  zum schnellen Laden großer Be-Kristalle,  $8.5 \text{ ng s}^{-1}$ .

ordnung  $2.5 \text{ mm}$ , so dass der Faktor zwischen  $\text{Be}^+$ -Produktions- und Laderate von der Größenordnung Eins sein sollte. Dies entspricht den experimentellen Beobachtungen. Hier kann die Laderate durch konsequente Aufnahme von CCD-Bildern des Fallenvolumens bei  $313 \text{ nm}$  im Abstand von  $1 \text{ s}$  berechnet werden. Dies ist möglich, da an Hand der CCD-Bilder die Anzahl der geladenen und gekühlten  $\text{Be}^+$ -Ionen auch für größere  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalle und -Flüssigkeiten, anhand des “Zero-T-charged-liquid“ Modells [175], abgeschätzt werden kann.

### Abhängigkeit der Photoionisationsrate von den Laserparametern

Zur schnelleren Erfassung von Abhängigkeiten der Photoionisationsrate von den Laserparametern wird Gleichung (1.59) im Folgenden umgeformt. Mit der in Kapitel 1.2 definierten Größe des Sättigungsparameters  $s = I/I_S$  als Verhältnis von Laser- zu Sättigungsintensität  $I_S = \pi \hbar c \Gamma / (3\lambda^3)$  des intermediären Übergangs, sowie dem Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{1S_0 \rightarrow 1P_1} = \sigma_{\text{exc}} = 3\lambda^2 / (2\pi)$  [112] für die resonante Anregung



**Abbildung 1.30:** Nach Gleichung (1.59) berechnete Produktionsrate von  $\text{Be}^+$ -Ionen mittels resonanzverstärkter Zwei-Photonen-Ionisation bei Photonenenergien von 5.27 eV, dargestellt in Abhängigkeit der Leistung  $P_{235\text{ nm}}(\infty)$  des Photoionisationslasers. Die verschiedenen farbigen Kurven sind verschiedenen Laserverstimmungen bzgl. der atomaren Resonanzfrequenz des Übergangs  $2s\ ^1S_0 \longleftrightarrow 2p\ ^1P_1$  im Be-Atom zuzuordnen. Alle Kurven wurden für eine spezifische Ofentemperatur von 1250 K bestimmt. Die Laserleistung dient der Kontrolle des Be Ladeprozesses - vom deterministischen Laden einzelner  $\text{Be}^+$ -Ionen bis hin zum schnellen ( $\approx 10\text{ s}$ ) Laden von Coulomb-Kristallen mit ein paar  $10^4$   $\text{Be}^+$ -Ionen.

eines Zwei-Niveau-Systems mit  $\lambda = 235\text{ nm}$ , erhält man die Beziehung

$$\dot{N}_{\text{Be}^+} = \sigma_{exc} \cdot \sigma_{1P_1 \rightarrow \infty} \cdot \frac{1}{\Gamma} \cdot \left( \frac{I_{235\text{ nm}}}{E_{235\text{ nm}}} \right)^2 \cdot \frac{1}{(1+s) + (2\Delta/\Gamma)^2} \cdot N_{\text{Be}}. \quad (1.60)$$

Dabei ist zu beachten, dass mit Verringerung des PI-Laserdurchmessers  $2\omega$  nicht nur die Intensität nach  $I = P/(\pi\omega^3)$  größer, sondern auch die Anzahl  $N_{\text{Be}} \propto \omega^3$  der Target Be-Atome um den selben Faktor kleiner wird.

Ist  $\Delta = 0\Gamma$  und gleichzeitig  $s \ll 1$ , so kann der Faktor  $((1+s) + (2\Delta/\Gamma)^2)^{-1}$  vernachlässigt werden und es gilt direkt  $\dot{N}_{\text{Be}^+} \propto P_{235\text{ nm}}^2 \omega^{-2}$ . Analog erhält man bei Gültigkeit der Nebenbedingungen  $s \ll (2\Delta/\Gamma)^2$  und  $(\Gamma/(2\Delta))^2 \ll 1$  die näherungsweise geltende Formel

$$\dot{N}_{\text{Be}^+} = \sigma_{exc} \cdot \sigma_{1P_1 \rightarrow \infty} \cdot \frac{1}{\Gamma} \cdot \left( \frac{I_{235\text{ nm}}}{E_{235\text{ nm}}} \right)^2 \cdot \left( \frac{\Gamma}{4\Delta} \right)^2 \cdot N_{\text{Be}} \propto \frac{P_{235\text{ nm}}^2}{\omega^2}. \quad (1.61)$$

Ist hingegen für  $s \gg 1$  der resonante Anregungsschritt gesättigt, so gilt nach Gleichung (1.59)  $\dot{N}_{\text{Be}^+} \propto P_{235\text{ nm}}$ , da dann dort der zweite Faktor eine Konstante wird. Das diskutierte Verhalten für die beiden Grenzfälle ist gut in Abbildung 1.30 zu sehen: für niedrige Leistungen des Photoionisationslasers (der Strahldurchmesser des

Lasers bleibt im Experiment unverändert) steigt die Be-Photoionisationsrate  $\dot{N}_{\text{Be}^+}$  quadratisch mit zunehmender Laserleistung an, wohingegen die Zunahme bei größeren Laserleistungen linear mit der Leistung erfolgt.

Im Experiment dient die Laserleistung der Kontrolle des  $\text{Be}^+$  Ladeprozesses. Für das deterministische Laden einzelner  $\text{Be}^+$ -Ionen (z.B. für die Bestimmung der Fallenfrequenzen für ein einzelnes  $\text{Be}^+$ -Ion) wird die zweite Verdopplungsstufe des Lasers z.B. im Scan-Modus betrieben, so dass eine geringe, zeitlich gemittelte, Laserleistung vorliegt und die zu erwartende Photoionisationsrate deutlich kleiner als  $1\text{ s}^{-1}$  ist. Für das schnelle Laden großer Be-Coulomb-Kristalle mit mehreren tausend Ionen, muss entweder eine hohe Ofen-Temperatur oder Laserleistung eingestellt werden. Die Reduktion der Temperatur des Ofens von 1250 K ausgehend um 50 K reduziert die Photoionisationsrate um ca. den Faktor 2.7, dies kann jedoch durch Erhöhung der Laserleistung von 5 mW auf 11 mW ausgeglichen werden.

Formal erkennt man an Gleichung (1.60) z.B. für den Fall ( $s \ll 1, \Delta = 0\Gamma$ ), dass für einen Multiphotonenprozess, bei dem  $N$  Photonen absorbiert werden, in  $N$ -ter Ordnung Störungstheorie die Übergangsrate  $R_{|g\rangle \rightarrow |\epsilon\rangle}^{(N)}$  proportional zu einem generalisierten Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{|g\rangle \rightarrow |\epsilon\rangle}^{(N)}$ , sowie zum Photonenfluss hoch  $N$  ist [172]:

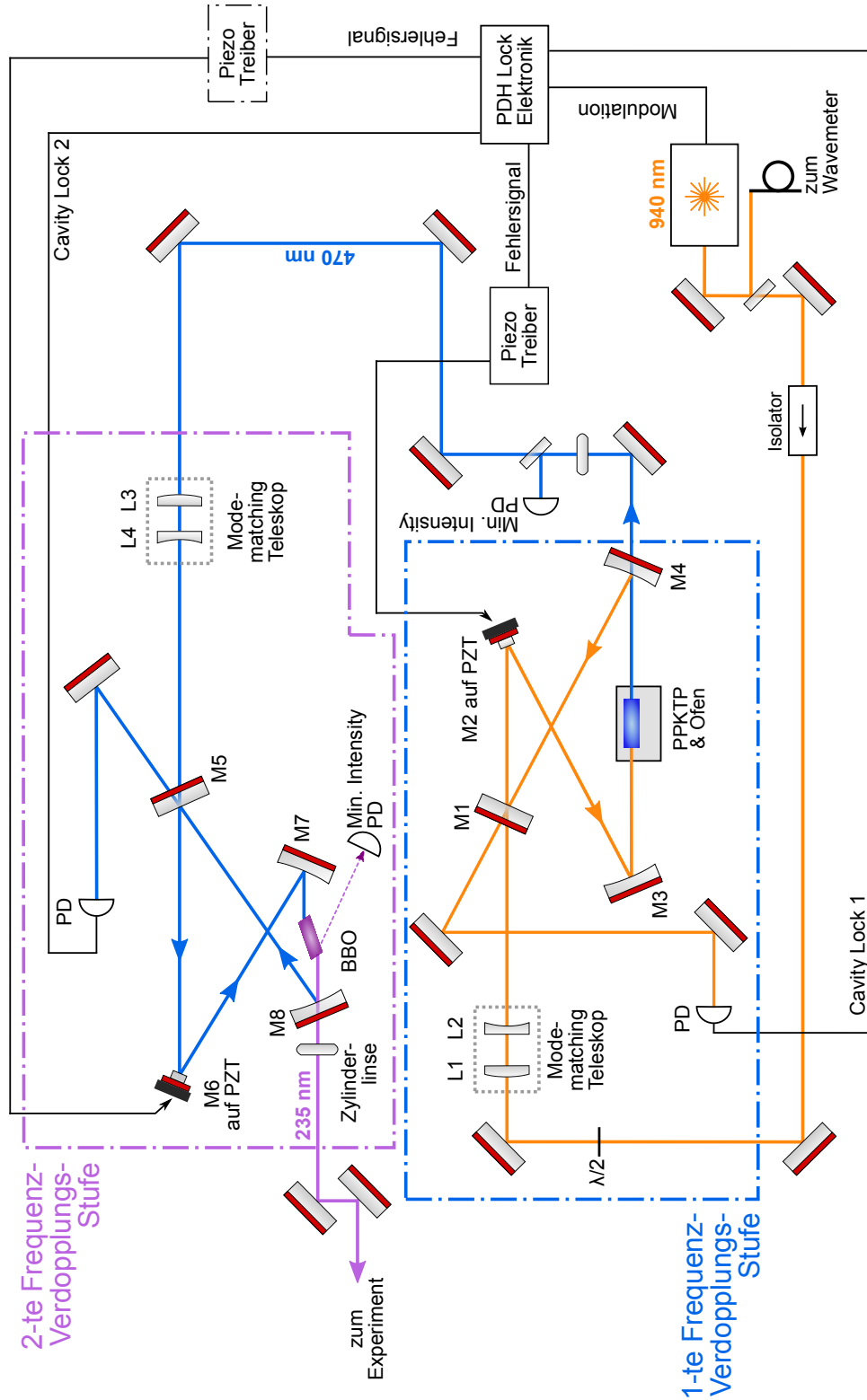
$$R_{|g\rangle \rightarrow |\epsilon\rangle}^{(N)} = \sigma_{|g\rangle \rightarrow |\epsilon\rangle}^{(N)} \left( \frac{I}{E} \right)^N. \quad (1.62)$$

Im vorliegenden Fall gilt  $N = 2$  und  $\sigma_{|g\rangle \rightarrow |\epsilon\rangle}^{(2)} = \sigma_{\text{exc}} \cdot \sigma_{1P_1 \rightarrow \infty} \cdot \Gamma^{-1} \approx 1 \times 10^{-43} \text{ m}^4\text{s}$ .

### Photoionisationslaser

Der in dieser Arbeit verwendete Photoionisationslaser mit einer Wellenlänge von 235 nm wird durch zweimalige Frequenzverdopplung (SHG) (engl. Second-harmonic-generation) des Laserlichtes eines kommerziellen Dioden-Lasers, der Firma Toptica, bei 940 nm und einer maximalen Ausgangsleistung von 1500 mW, erzeugt. [176] liefert eine ausführliche Beschreibung und Charakterisierung des verwendeten Lasersystems, dem die folgende Darstellung zusammenfassend folgt. Für eine theoretische Abschätzung der möglichen Ausgangsleistungen der beiden Stufen, für den hier speziell verwendeten Aufbau, werfe man einen Blick in die, im Rahmen dieser Arbeit mitbetreute Masterarbeit [162]. Zur allgemeinen Theorie der nichtlinearen Optik und Frequenzverdopplung sei auf die Standard-Lehrbücher, wie [177], verwiesen. Eine ausführliche theoretische Studie zur parametrischen Wechselwirkung fokussierter Gaußscher Laserstrahlen mit uniaxialen, nicht-linearen Kristallen findet sich in [178]. Diese Theorie von Boyd und Kleinman bildete auch die Grundlage der Designs aller hier verwendeten Überhöhungsresonatoren zur Frequenzverdopplung.

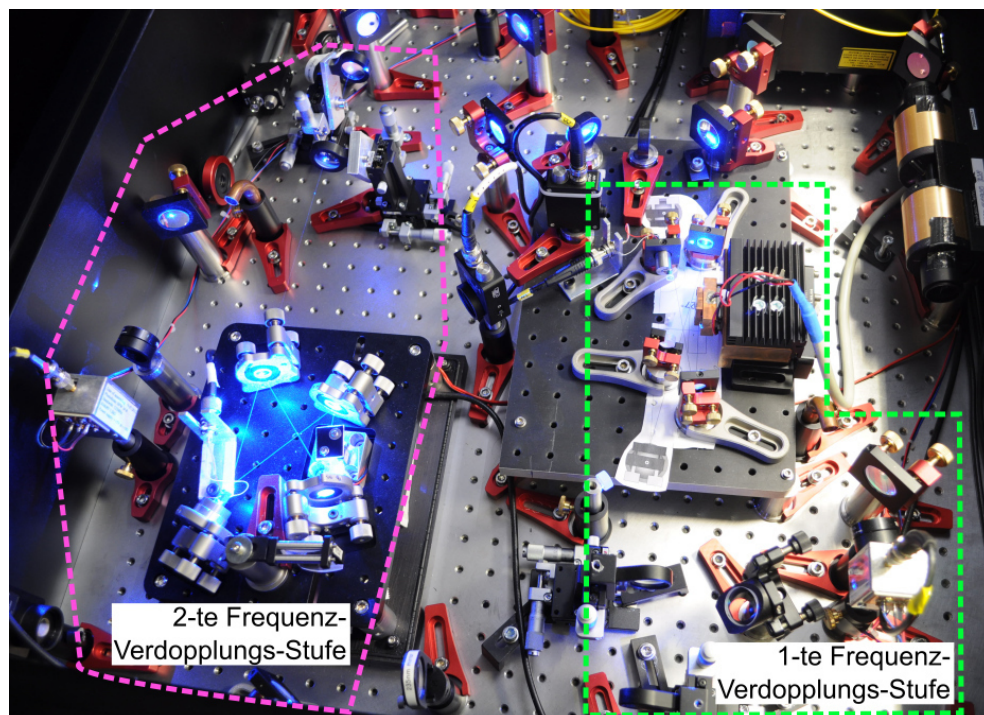
Das Licht des Dioden-Lasers wird über ein Teleskop zur Modenanpassung in die erste Stufe der Frequenzverdopplung, von 940 nm auf 470 nm, geleitet. Diese findet in einem Überhöhungsresonator (engl. Bowtie cavity) mittels eines AR-beschichteten PPKTP-Kristalls statt, um eine erhöhte Ausgangsleistung bei 470 nm zu erhalten. Der Kristall besitzt eine Länge von 20 mm und wird stabil auf einer Temperatur von



**Abbildung 1.31:** Schematische Zeichnung des Photoionisations-Lasersystems zur Erzeugung von linear polarisiertem Laserlicht bei 235 nm. Spiegel sind mit  $M_x$ , Linsen mit  $L_x$  nach aufsteigender Nummerierung  $x$  entlang des Strahlenganges gekennzeichnet. Weitere Abkürzungen: PD - Photodiode, PZT - piezoelektrischer Aktor,  $\lambda/2$ ,  $\lambda/4$ , - Wellenplatten, PPKTP und BBO bezeichnen die verwendeten nichtlinearen Kristalle.

22.4 °C gehalten um eine Quasi-Phasenanpassung (QPM) (engl. quasi phase matching) zu erreichen. Neben einer starken Nicht-Linearität besitzt der Kristall eine hohe Transparenz sowohl bei 940 nm als auch bei 470 nm. Die Geometrie des Überhöhungsresonators ist auf eine möglichst hohe Konversionseffizienz optimiert und seine Länge mit Hilfe der Pound-Drever-Hall-Technik (PDH) [179] auf den Laser gelockt. Hierfür wird das vom Diodenlaser ausgesandte Licht phasenmoduliert. Am Resonator-Einkoppler reflektiertes Licht fällt auf einen schnellen Photodetektor, dessen Ausgangssignal dann mit dem phasenverschobenen Signal eines Lokalszillators gemischt und durch einen Tiefpass gefiltert wird. Das somit erzeugte Fehlersignal wird verwendet, um über einen Piezotreiber, der einen Piezo-Stack ansteuert, auf dem Spiegel M2 aufgeklebt ist, die Länge des Überhöhungsresonators entsprechend anzupassen. Die Phasenmodulation des Laserlichtes bei 940 nm wird dem per Frequenzverdopplung erzeugten Licht bei 470 nm aufgeprägt, so dass für das PDH-Lock der zweiten Verdopplungsstufe keine erneute Phasenmodulation des blauen Lichtes nötig ist. Aufgrund thermischer Linseneffekte [180] wurde der Überhöhungsresonator im verwendeten Aufbau enger, als optimal berechnet [176], aufgebaut. Die Länge des langen Resonatorarms (Abstand M3 zu M4) beträgt hier nur 118 mm. Bei einem Eingangsstrom des Dioden-CW-Lasers von 2157 mA konnte mit dem Resonator eine Ausgangsleistung von 300 mW bei 470 nm erreicht werden.

Das, in der ersten Stufe erzeugte, Licht bei 470 nm, wird nun über ein weiteres



**Abbildung 1.32:** Fotoaufnahme des Photoionisations-Lasersystems mit den beiden Frequenzverdopplungsstufen. Die Orientierung des Fotos ist, zur besseren Vergleichbarkeit, analog zur schematischen Abbildung 1.31. Der Ausgang des Diodenlasers befindet sich in der Ecke rechts oben.

Teleskop zur Modenanpassung in die zweite Stufe zur Frequenzverdopplung eingebracht, um Licht der Wellenlänge 235 nm zu erzeugen. Die Stufe besteht wieder aus einem Überhöhungsresonator, bei dem jedoch diesmal ein, im Brewsterwinkel für 470 nm geschnittenen, Beta-Bariumborat-Kristall (BBO-Kristall), der Länge 10 mm, zur resonanzverstärkten Frequenzverdopplung, genutzt wird. Im Gegensatz zur ersten Verdopplungsstufe wird hier eine Winkel-Phasenanpassung (engl. angle phase-matching) verwendet. Der kritische Phasenanpassungswinkel (engl. critical type-I phase matching) beträgt hier  $58.15^\circ$ . Auch der zweite Überhöhungsresonator ist bezüglich seiner Konversionseffizienz optimiert, wobei die Stabilisierung auch hier über eine Längenanpassung, durch die Position des Spiegels M6 des Resonators, mit Hilfe der PDH-Technik, realisiert wird. Bei einer Eingangsleistung am Eingang der zweiten Frequenzverdopplungsstufe von 300 mW wurde eine maximale Ausgangsleistung von 30 mW erreicht.

Die Laserwellenlänge wird bei 940 nm mit einem Wavemeter der Firma High Finesse bestimmt und durch einen Regelkreis stabil gehalten. Die Linienbreite des Diodenlasers bei 940 nm liegt bei ca. 1 MHz, d.h. sie beträgt bei 235 nm um die 4 MHz. Damit ist sie ausreichend klein, da bei typischen Paulfallen-Laser-Experimenten auf den Photoionisationslaser die geringsten Anforderungen bzgl. der Linienbreite zu kommen. Während Uhrenlaser Linienbreiten im Bereich von 10 mHz bis 1 Hz haben sollten, liegen die Anforderungen bei Kühl- und Repump-Lasern in der Größenordnung von 100 kHz bis 1 MHz. Photoionisationslaser sollten wenigstens Linienbreiten  $< 100$  MHz aufweisen, was angesichts der Rest-Dopplerbreite (Atomstrahl und PI-Laser nie absolut orthogonal zueinander, Atomstrahl nie perfekt kollimiert) des Be-Atomstrahls die Anforderungen an eine effiziente Photoionisation erfüllt.

### 1.5.3 Laserkühlen von $\text{Be}^+$ -Ionen

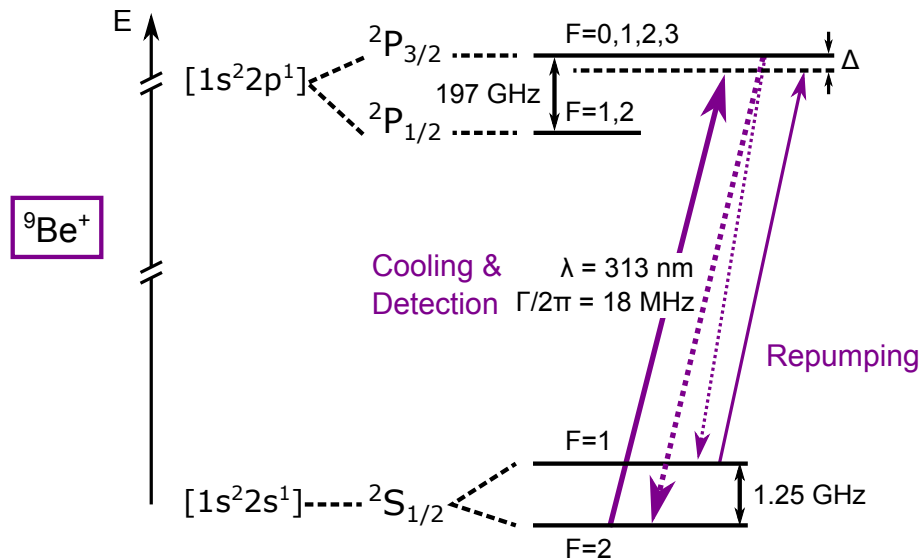
#### Spektroskopische Eigenschaften des ${}^9\text{Be}^+$ -Ions

Entfernt man ein Elektron aus atomarem Beryllium, als Element der 2. Hauptgruppe des Periodensystems, so besitzt das  $\text{Be}^+$ -Ion mit der Grundzustands-Elektronenkonfiguration  $[\text{He}]2s^1$  ein einzelnes Valenzelektron. Die abgeschlossene Schale der Rumpfelektronen liegt energetisch wesentlich tiefer als die tiefsten Zustände des Leuchtelektrons. Dadurch gibt es keine Mehrelektronenanregung im Bereich optischer Photonenenergien. Es ergibt sich der einfache Fall eines Quasi-Einelektronensystems, bei dem sich das Valenzelektron im Wesentlichen im durch die Rumpfelektronen abgeschirmten Coulomb-Potential des Atomkerns bewegt. Es ergibt sich ein einfaches und damit zugleich für Laserkühlung attraktives Energieniveau-Schema, dessen unterste Zustände in Abbildung 1.33 gezeigt sind.

Als alkaliähnliches Ion ist der Grundzustand bei  $\text{Be}^+$  ein S-Orbital (Hüllengesamtdrehimpuls  $L = 0$ , Gesamtelektronenspin  $S = 1/2$ ). Beim untersten angeregten Zustand handelt es sich um ein P-Orbital ( $L = 1$ ). Der  $S \longleftrightarrow P$  Übergang ist elektrisch dipolerlaubt und kann mittels Laserlicht bei  $\lambda = 313\text{ nm}$  angeregt werden.

Die Spin-Bahndrehimpuls-Kopplung führt zur Feinstrukturaufspaltung des  $P$ -Zustandes in die zwei Unterzustände  $2p^2P_{1/2}$  und  $2p^2P_{3/2}$  (spektroskopische Notation), während der Grundzustand  $2s^2S_{1/2}$  keine Feinstrukturaufspaltung erfährt. Die Feinstrukturaufspaltung des  $P$ -Zustandes wurde experimentell zu  $197.2\text{ GHz}$  (ca.  $0.065\text{ nm}$ ) bestimmt [181].

Bei einer Lebensdauer von  $8.2\text{ ns}$  des  ${}^2P_{3/2}$  Niveaus ( $\Gamma/2\pi = 19.4\text{ MHz}$  natürliche



**Abbildung 1.33:** Niveauschema eines  $\text{Be}^+$ -Ions mit den für das Doppler-Laserkühlen relevanten Energieniveaus (im Grenzfall  $B \rightarrow 0$ , da dann  $F$  auch für den angeregten  $P_{3/2}$  Zustand eine gute Quantenzahl ist).

Linienbreite) [182] und einer typischen Linienbreite des Kühllasers von  $< 100$  kHz kann das Ion gezielt auf dem Übergang  $^2S_{1/2} \longleftrightarrow ^2P_{3/2}$  angeregt werden und das  $^2P_{1/2}$  Niveau spielt für die folgenden Betrachtungen keine Rolle.

Bei ungerader Massenzahl hat das  $\text{Be}^+$ -Ion einen halbzahligen Kernspin mit Quantenzahl  $I = 3/2$ . Dies führt zur Hyperfeinstrukturaufspaltung der relevanten Energieniveaus.

Bei schwachem (quantitative Definition folgt auf Seite 75 Gleichung (1.70)) externen Magnetfeld koppeln Elektronen-Gesamtdrehimpuls  $\vec{J}$  und Kernspin  $\vec{I}$  zum atomaren Gesamtdrehimpuls  $\vec{F} = \vec{J} + \vec{I}$ . Die Quantenzahl  $F$  kann dabei die Werte  $|J - I| \leq F \leq J + I$  annehmen [172]. Für den  $\text{Be}^+$  Grundzustand gilt  $J = 1/2$  und  $I = 3/2$  und damit  $F \in \{1, 2\}$ , während für den, für die Laserkühlung relevanten, angeregten Zustand  $J = 3/2$  mit  $F \in \{0, 1, 2, 3\}$  gilt.

Der Hamiltonoperator  $H_{HFS}$ , der die Entstehung der Hyperfeinstruktur durch die magnetische Dipol-Wechselwirkung (magnetisches Dipolmoment des Atomkerns mit dem Magnetfeld der Atomhülle) und die elektrostatische Quadrupol-Wechselwirkung (Kernquadrupolmoment mit dem  $\vec{E}$ -Feld der Elektronenhülle) beschreibt lautet [172]:

$$H_{HFS} = A_{HFS} \vec{I} \vec{J} + B_{HFS} \frac{3(\vec{I} \vec{J})^2 + \frac{3}{2} \vec{I} \vec{J} - I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)J(2J-1)}. \quad (1.63)$$

Die Diagonalisierung von  $H_{HFS}$ , indem  $\vec{J}$  und  $\vec{I}$  zu  $\vec{F}$  gekoppelt werden, führt zu einer Änderung der Energieeigenwerte durch die Hyperfein-Wechselwirkung von [172]:

$$\Delta E_{HFS} = \frac{A}{2} K + B \frac{K(K+1) - 2I(I+1)J(J+1)}{2I(2I-1)2J(2J-1)} \quad (1.64)$$

$$\text{mit } K = F(F+1) - I(I+1) - J(J+1). \quad (1.65)$$

Dabei ist  $A$  die Hyperfeinkopplungskonstante der magnetischen Dipol-Wechselwirkung und  $B$  die Hyperfeinkopplungskonstante der elektrostatischen Quadrupol-Wechselwirkung. Der Term mit  $B$  aus Gleichung (1.64) ist u.a. identisch Null für  $J = 1/2$  Niveaus, d.h. z.B. für den  $S_{1/2}$  Grundzustand des  $\text{Be}^+$ -Ions.

Der Parameter  $A$  für den  $\text{Be}^+$  Grundzustand wurde experimentell zu  $A/h \approx -625$  MHz bestimmt [84]. Damit ergibt sich die in Abbildung 1.33 skizzierte HFS-Aufspaltung des Grundzustandes nach:

$$\Delta E_{HFS}(^2S_{1/2}) = \begin{cases} \frac{A}{2} \times \frac{3}{2} \approx h \times -469 \text{ MHz} & \text{für } F = 2 \\ \frac{A}{2} \times -\frac{5}{2} \approx h \times 625 \text{ MHz} & \text{für } F = 1. \end{cases} \quad (1.66)$$

Es ergibt sich folglich eine invertierte Hyperfeinstruktur im Grundzustand und der energetische Abstand im HFS-Dublett des  $2s^2S_{1/2}$  Zustandes beträgt 1.25 GHz.

Die Hyperfeinstrukturaufspaltung des  $P_{1/2}$  Zustandes beträgt insgesamt 237 MHz [181], was die Vernachlässigung dieses Zustandes für den resonanten Laserkühlprozess bestätigt.



Die HFS-Aufspaltung des  $P_{3/2}$  Niveaus ist durch die experimentell bestimmten HFS-Kopplungskonstanten festgelegt:  $|A|/h \leq 0.6$  MHz,  $B \approx 2$  MHz [183]. Die Hyperfeinstrukturaufspaltung liegt hier folglich innerhalb der Linienbreite des angeregten Zustandes und kann nicht aufgelöst werden.

Die  $(2F+1)$  magnetischen Unterzustände eines Hyperfein-Multipletts sind bei Abwesenheit eines externen Magnetfeldes entartet. Bei Anlegen eines schwachen Magnetfeldes wird die Entartung durch den linearen anomalen Zeeman-Effekt aufgehoben. Die magnetische Wechselwirkung mit dem externen Magnetfeld wird dann als Störung im gekoppelten  $|J, I, F, m_F\rangle$  Schema behandelt. In diesem Fall ist  $F$  eine gute Quantenzahl und der Wechselwirkungs-Hamiltonoperator lautet:

$$H_B = \mu_B g_F F_z B_z, \quad (1.67)$$

mit dem Hyperfein-Landé-Faktor

$$g_F \simeq g_J \frac{F(F+1) - I(I+1) + J(J+1)}{2F(F+1)}. \quad (1.68)$$

Die entsprechende Energieverschiebung der Niveaus im Bereich schwacher Magnetfelder aufgrund des Zeemaneffektes ergibt sich zu:

$$\Delta E_{|Fm_F\rangle} = \mu_B g_F m_F B_z. \quad (1.69)$$

Schwache Magnetfelder  $B$  sind solche, für die

$$B \ll B_I = \frac{Ah}{g_J \mu_B} = \begin{cases} \approx 22 \text{ mT} & \text{für } {}^2S_{1/2} \\ \approx 30 \text{ }\mu\text{T} & \text{für } {}^2P_{3/2} \end{cases} \quad (1.70)$$

gilt, da dann die magnetische Dipol-Wechselwirkung zwischen Kernhülle und Magnetfeld des Kernmomentes stärker ist als die Wechselwirkung zwischen Hülle und externem Magnetfeld.

Im Labor wird entlang der Symmetrieachse der Paulfalle ein  $\vec{B}$ -Feld zur Definition der Quantisierungsachse in der Größenordnung von 100  $\mu\text{T}$  bis 300  $\mu\text{T}$  angelegt.

An der Ungleichung (1.70) erkennt man, dass bei typischen angelegten externen Magnetfeldern im Grundzustand des  $\text{Be}^+$ -Ions  $F$  eine gute Quantenzahl ist. Dies gilt jedoch nicht für das  ${}^2P_{3/2}$  Niveau. Dort ist das externe  $B$ -Feld stark im Vergleich zur Hyperfeinaufspaltung, so dass die Wechselwirkung zwischen magnetischem Moment der Elektronenhülle mit dem externen Magnetfeld im Vergleich zur Kopplung an das Kernmagnetfeld dominiert. Das geeignete Kopplungsschema zur Beschreibung der Energieniveaus und Übergänge ist jetzt  $|J, m_J, I, m_I\rangle$ . In dieser Basis ergeben sich die Energieverschiebungen der Niveaus aufgrund der zusätzlichen Wechselwirkungen zu [172]:

$$\Delta E_{HFS} = A m_J m_I + (g_J \mu_B m_J - g_I \mu_N m_I) B_z, \quad (1.71)$$

mit den Landé-Faktoren  $g_J$  und  $g_I$  (siehe z.B. [172] oder [111] für ausführliche Definitionen und Herleitungen).

Im angelegten Quantisierungs-Magnetfeld wählt man somit verschiedene Störungshierarchien bzgl. Magnetfeld- und Hyperfeinaufspaltung für Grundzustand und angeregten Zustand. Dies wird in Abbildung 1.34 illustriert. der Übersichtlichkeit wegen wird in der Abbildung jedoch auf die Darstellung der Energieniveaushiftung im Magnetfeld verzichtet.

Nach den Auswahlregeln für E1-Übergänge kann ein nach  $2p^2P_{3/2}$  angeregtes  $\text{Be}^+$ -Ion spontan in beide Hyperfein-Niveaus des Grundzustandes zerfallen. Durch die Anregung mittels schmalbandiger Laserstrahlung sind die Ionen im  $F = 1$  Hyperfein-Zustand für den Absorptions-Emissions-Zyklus der Laserkühlung verloren. Um dennoch einen quasi-geschlossenen Übergang zu erzeugen, kommt ein zweiter Laser (genannt Repumper, da er das Leuchtelektron zurück in den Kühlzyklus pumpt) zum Einsatz, der gegenüber dem eigentlichen Kühllaser um die Hyperfeinaufspaltung des Grundzustandes  $\Delta f_{HFS}$  rot verstimmt ist (siehe Abb. 1.33).

### Laserpolarisation und Repumper

Wie viel Intensität man für den Repumperzweig des Kühllasers benötigt, hängt von den einzelnen relativen Oszillatorstärken des Termschemas, der Laserpolarisation und der ursprünglichen Besetzung der Hyperfeinniveaus des Grundzustandes ab. Daher werden im Folgenden die relativen Oszillatorstärken für die einzelnen erlaubten Übergänge zwischen Grundzustand  $S_{1/2}$  und angeregtem  $P_{3/2}$  Zustand bei typischen angelegten Magnetfeldern berechnet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 1.34 zusammengefasst.

Die Stärke der Kopplung von fast-resonantem Laserlicht mit einem E1 Übergang zwischen den Zuständen  $|g\rangle$  und  $|e\rangle$  eines Atoms ist u.a. durch das Dipolmatrixelement  $d_{ge}$  festgelegt. Die Übergangswahrscheinlichkeit  $W_{ge}$  ist nach Fermis Goldener Regel, in der elektrischen Dipolnäherung, direkt proportional zu  $|d_{ge}|^2$ :

$$W_{ge} \propto |d_{ge}|^2. \quad (1.72)$$

Daher ist es für den relativen Vergleich der Stärken aller möglichen Übergänge vom Grundzustand in den angeregten  $P_{3/2}$  Zustand des  $\text{Be}^+$ -Ions vollkommen ausreichend die Quadrate der Dipolmatrixelemente  $d = q_e \langle g | \vec{r} \cdot \vec{\epsilon} | e \rangle$  zu bestimmen. Dabei steht  $q_e$  für die Elektronenladung und  $q_e \vec{r} \cdot \vec{\epsilon}$  für das Skalarprodukt aus elektrischem Dipolmoment und Polarisationsvektor  $\vec{\epsilon}$  der Laserstrahlung.

Da im Folgenden nur der für die Experimente dieser Arbeit relevante Fall von Magnetfeldstärken, in der Größenordnung mehrerer  $100 \mu\text{T}$ , betrachtet wird, beschreibt  $|d_{ge}|^2$  damit den Übergang zwischen Subniveaus  $|J, I, F, m_F\rangle$  des Grundzustandes und den Unterzuständen  $|J', m'_J, I', m'_I\rangle$  des  $P_{3/2}$  Niveaus nach:

$$d_{ge} = q_e \langle J, I, F, m_F | \vec{r} \cdot \vec{\epsilon} | J', m'_J, I', m'_I \rangle. \quad (1.73)$$

Im Gegensatz zu üblichen Lehrbuch-Beispielen beinhaltet  $d_{ge}$  im vorliegenden Fall einen verschiedenen Satz an guten Quantenzahlen für die beiden involvierten Zustände. Die Hyperfeinniveaus  $|J, I, F, m_F\rangle$  des Grundzustandes können mit Hilfe der Clebsch-Gordan Koeffizienten in der Basis der ungekoppelten Drehimpulse

$|J, m_J, I, m_I\rangle$  nach

$$|J, I, F, m_F\rangle = \sum_{m_J=-J}^J \sum_{m_I=-I}^I \underbrace{\langle J, m_J, I, m_I | J, I, F, m_F \rangle}_{\text{Clebsch-Gordan Koeffizienten}} |J, m_J, I, m_I\rangle \quad (1.74)$$

entwickelt werden. Für die folgenden Überlegungen werden die Clebsch-Gordan Koeffizienten mittels Wigner  $3J$ -Symbolen ausgedrückt [111]:

$$\langle J, m_J, I, m_I | J, I, F, m_F \rangle = (-1)^{-J+I-m_F} \sqrt{2F+1} \begin{pmatrix} J & I & F \\ m_J & m_I & -m_F \end{pmatrix}. \quad (1.75)$$

Um die Übergangswahrscheinlichkeiten je in Abhängigkeit der Polarisation des Laserlichtes bestimmen zu können, wird der Polarisations-Einheitsvektor  $\vec{\epsilon}$  in der sphärischen Basis

$$\vec{\epsilon} = \epsilon_{-1} \frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{\epsilon}_x - i\vec{\epsilon}_y) + \epsilon_0 \vec{\epsilon}_z + \epsilon_{+1} \frac{-1}{\sqrt{2}} (\vec{\epsilon}_x + i\vec{\epsilon}_y) \quad (1.76)$$

geschrieben. Drückt man zusätzlich den allgemeinen Ortsvektor  $\vec{r}$  in der atomaren Helizitätsbasis aus, so kann das Skalarprodukt aus Orts- und Polarisationsvektor mit Hilfe der Kugelflächenfunktionen  $Y_{1q}(\theta, \phi)$  ( $l=1, m=q$ ) wie folgt geschrieben werden:

$$\vec{r} \cdot \vec{\epsilon} = r \sum_{q=-1}^1 \epsilon_q Y_{1q} := \sum_{q=-1}^1 r_q. \quad (1.77)$$

Des Weiteren erfolgt die Beschränkung auf je reine  $\sigma^\pm, \pi$  Polarisation des absorbieren bzw. emittierten Lichtes mit

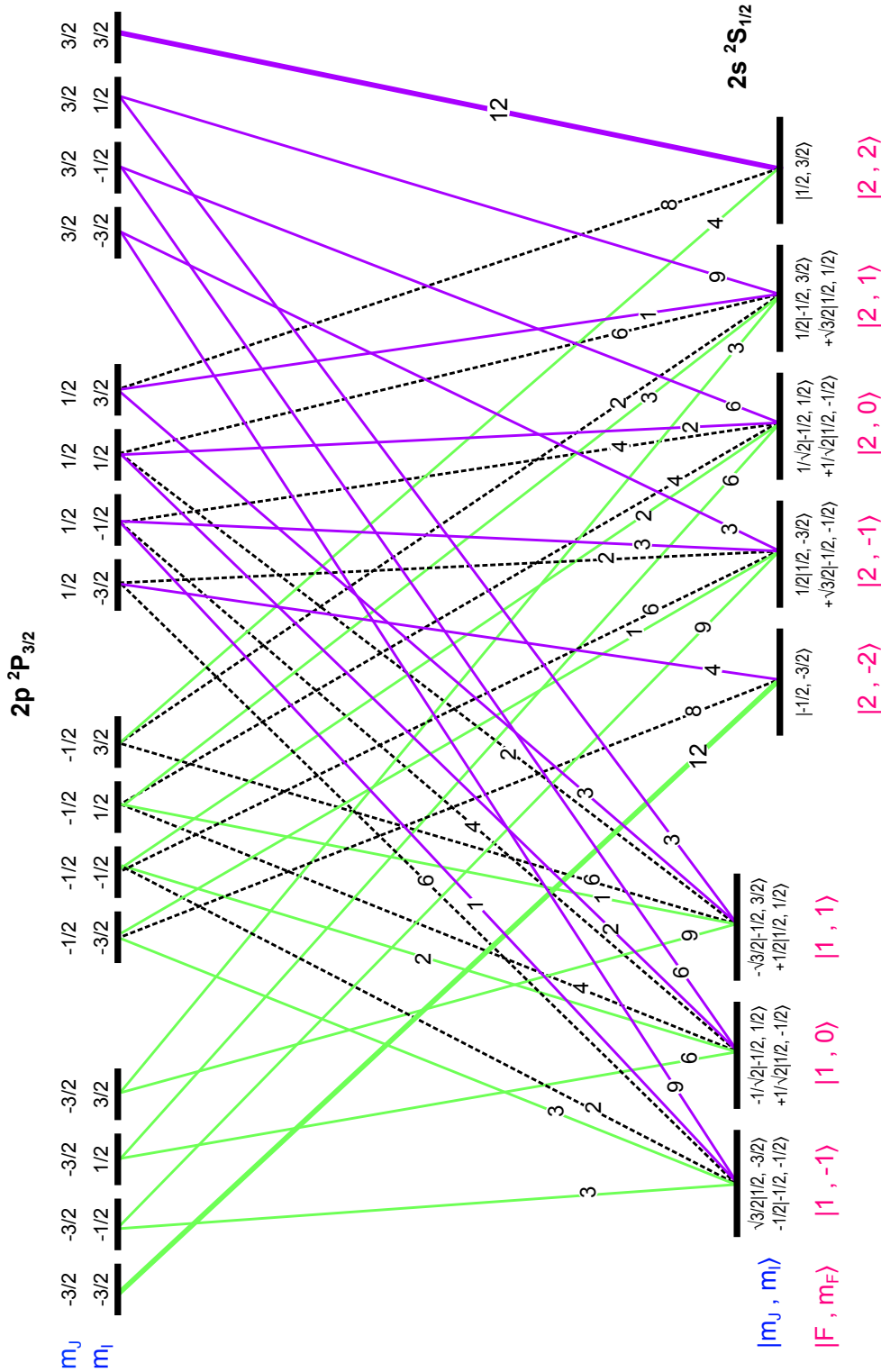
$$\begin{aligned} \sigma^+\text{-Licht} : \quad q &= \Delta m_J = +1 & \epsilon_{+1} &= 1, \epsilon_{-1} = \epsilon_0 = 0 \\ \sigma^-\text{-Licht} : \quad q &= \Delta m_J = -1 & \epsilon_{-1} &= 1, \epsilon_{+1} = \epsilon_0 = 0. \\ \pi\text{-Licht} : \quad q &= \Delta m_J = 0 & \epsilon_0 &= 1, \epsilon_{-1} = \epsilon_{+1} = 0 \end{aligned} \quad (1.78)$$

Damit ist je nach Polarisation stets nur genau ein Summand aus  $d_{ge} = \sum_{q=-1}^1 d_{ge}(q)$  von Null verschieden und man kann die Dipolmatrixelemente getrennt nach Polarisation (charakterisiert durch  $q$ ) betrachten.

Des Weiteren wechselwirkt der elektrische Dipoloperator nicht mit dem Kernspin [111, 184]. Dies hat die Beschränkung auf Übergänge mit  $\Delta I = 0$  und  $\Delta m_I = 0$  zur Folge, so dass die Kombination der Gleichungen (1.73)-(1.75)

$$d_{ge}(q) = q_{e-} \sum_{m_J=-J}^J (-1)^{-J+I-m_F} \sqrt{2F+1} \begin{pmatrix} J & I & F \\ m_J & m_I & -m_F \end{pmatrix} \langle J, m_J | r_q | J', m'_J \rangle \quad (1.79)$$

ergibt. Das rechte Matrixelement aus obiger Gleichung (1.79) kann mit Hilfe des Wigner-Eckart Theorems [111] in einen Clebsch-Gordan Koeffizienten und ein rein



**Abbildung 1.34:** Nach Gleichung (1.82) berechnete, relative Stärken für die erlaubten Übergänge zwischen dem  $2s^2S_{1/2}$  Grundzustand und dem angeregten  $2p^2P_{3/2}$  Niveau des  $\text{Be}^+$ -Ions. Zur besseren Übersichtlichkeit sind die Stärken dabei jeweils auf 12 als Maximalwert normiert ( $12 \hat{=} 1$ ). Übergänge die mit  $(\sigma^+, \sigma^-, \pi)$ -Laserlicht angeregt werden können sind in (lila, grün, schwarz) gekennzeichnet. Da bei typischen, im Experiment angelegten, Magnetfeldstärken Grund- und angeregter Zustand verschiedene gute Quantenzahlen haben, sind die Unterniveaus in  $|m_J, m_I\rangle$  Basis für beide Zustände gekennzeichnet. Für den Grundzustand sind zusätzlich die Quantenzahlen  $F, m_F$  angegeben.

radiales reduziertes Matrixelement faktorisiert werden:

$$\begin{aligned}
 \langle J, m_J | r_q^1 | J', m'_J \rangle &= \\
 &= \langle J', m'_J, 1, q | J', m'_J \rangle \frac{\langle J || r || J' \rangle}{\sqrt{2J' + 1}} \\
 &= (-1)^{-J'+1-m_J} \frac{\sqrt{2J+1}}{\sqrt{2J'+1}} \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ m'_J & q & -m_J \end{pmatrix} \langle J || r || J' \rangle .
 \end{aligned} \tag{1.80}$$

Damit erhält man für das Dipolmatrixelement von Übergängen im  $\text{Be}^+$ -Ion, bei für den  $P_{3/2}$  Zustand hohen Magnetfeldern und für eine spezifische Polarisation des Lichtes  $q$ , folgende Gleichung:

$$\begin{aligned}
 d_{ge}(q) &= q e^{-} \sum_{m_J=-J}^J (-1)^{-J+I-m_F-J'+1-m_J} \frac{\sqrt{2F+1}\sqrt{2J+1}}{\sqrt{2J'+1}} \cdot \\
 &\cdot \begin{pmatrix} J & I & F \\ m_J & m_I & -m_F \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ m'_J & q & -m_J \end{pmatrix} \langle J || r || J' \rangle .
 \end{aligned} \tag{1.81}$$

Für die Überlegungen zum Laserkühlübergang des  $\text{Be}^+$ -Ions ist es ausreichend die relativen Stärken  $S(q)$  der Übergänge  $|F, m_F\rangle \rightarrow |m_J, m_I\rangle$  zu vergleichen. Da zusätzlich das Wigner  $3J$ -Symbol aus Gleichung (1.81) nur für ein bestimmtes  $m_J$  von Null verschieden ist, reicht es vollkommen aus den Term

$$|d_{ge}(q)|^2 \propto S(q) = (2F+1) \left[ \begin{pmatrix} J & I & F \\ m_J & m_I & -m_F \end{pmatrix} \begin{pmatrix} J' & 1 & J \\ m'_J & q & -m_J \end{pmatrix} \right]^2 \tag{1.82}$$

für die verschiedenen Polarisationen zu berechnen.

Die, nach Gleichung (1.82) für die  $2s^2S_{1/2} \longleftrightarrow 2p^2P_{3/2}$  Übergänge berechneten, relativen Oszillatorstärken sind in Abbildung 1.82 dargestellt.

Die Auswahlregeln

$$m'_J - m_J = q, \quad \Delta m_I = 0, \tag{1.83}$$

welche durch die Eigenschaften der Wigner  $3J$ -Symbole in den Dipolmatrixelementen (1.81) festgelegt werden, bestimmen die in Abbildung 1.34 eingetragenen möglichen Übergänge. Da bei den typischen, im Experiment angelegten Magnetfeldstärken, der Grundzustand und der angeregte  $P_{3/2}$  Zustand verschiedene, gute Quantenzahlen haben stellt man die  $|F, m_F\rangle$  Zustände der Hyperfein-Niveaus des Grundzustandes nach Gleichung (1.74) als Linearkombination in der  $|m_J, m_I\rangle$  Basis dar und bezieht die Auswahlregeln (1.83) auf diese Basis.

Befindet sich das Leuchtelektron des  $\text{Be}^+$ -Ions einmal im  $|F=2, m_F=+2\rangle$  bzw.  $|F=2, m_F=-2\rangle$  Unterniveau des  ${}^2S_{1/2}$  Grundzustandes, so kann sich für perfekte  $\sigma^+$ - bzw.  $\sigma^-$ -Polarisation des treibenden Laserlichtes aufgrund der Auswahlregeln (1.83) ein geschlossener Übergang ergeben. Diese beiden Fälle entsprechen der Realisierung des idealen Zwei-Niveau-Systems aus Kapitel 1.2.1. Für das Laserkühlen wird daher der Kühllaser  $\sigma^+$  bzw.  $\sigma^-$  polarisiert und das  $\text{Be}^+$ -Ion auf dem geschlossenen  ${}^2S_{1/2}(F=2, m_F=+2) \longleftrightarrow {}^2P_{3/2}(m_J=3/2, m_I=3/2)$  bzw.

$^2S_{1/2}(F=2, m_F=-2) \longleftrightarrow ^2P_{3/2}(m_J=-3/2, m_I=-3/2)$  Übergang getrieben. Zu Beginn des Laserkühlens kommt es zu Dopplerverschiebungen in der Größenordnung mehrerer GHz, so dass für heiße  $\text{Be}^+$ -Ionen die beiden Hyperfein-Niveaus des Grundzustandes thermisch mit gleicher Wahrscheinlichkeit besetzt sind. Analoges gilt bis zum Doppler-Kühllimit für die anfängliche Besetzung der magnetischen Unterzustände des  $F=2$  Niveaus. Des Weiteren kann man mit Hilfe der in Abbildung 1.34 angegebenen Übergangsstärken direkt ableiten, dass ein mit  $\sigma^+$ -Laserlicht aus dem  $F=2$  Hyperfein-Grundzustand angeregtes Ion, sich nach einem einzelnen Absorptions-Emissions-Zyklus mit einer Wahrscheinlichkeit von 37.5 % anschließend im  $F=1$  Hyperfein-Niveau des Grundzustandes befindet. Diese Überlegungen führen zu dem Schluss, dass ein um 1.25 GHz gegenüber dem Haupt-Kühlaser rot verstimmt, Repumper-Laser benötigt wird, um einen näherungsweise geschlossenen Kühlübergang zu erzeugen. Der Repumper-Laser sollte dabei Leistungen in der gleichen Größenordnung wie der Haupt-Kühlaserstrahl besitzen.

Verwendet man für die Laserstrahlen jedoch reine  $\sigma^+$  oder  $\sigma^-$  Polarisation, so wird das aktive Elektron nach einer gewissen Zeit in den  $^2S_{1/2}(F=2, m_F=2)$  bzw.  $^2S_{1/2}(F=2, m_F=-2)$  Zustand durch optisches Pumpen [77, 185] überführt. Zu diesem Zeitpunkt wäre prinzipiell kein Repumper mehr nötig. Durch technische Imperfektionen (keine reine Polarisation des Laserlichtes, Schwankungen von Richtung und Betrag des Magnetfeldes und Restmagnetfelder in den übrigen Raumdimensionen) kann das Elektron trotzdem in andere Unterniveaus des Grundzustandes gelangen. Daher wird kontinuierlich eine Repumper, allerdings mit niedrigerer Leistung als der Haupt-Kühlaser, eingesetzt. Im Experiment der vorliegenden Arbeit wurde der Repumper-Zweig mit ca. 10 % der Leistung des Haupt-Kühlasers betrieben, bei gleichem Fokusedurchmesser in der Hauptfallenregion.

Experimentell gilt es, bei Verwendung von  $\sigma^+$ -Laserlicht, die Wahrscheinlichkeit zu minimieren, dass das Elektron in einen anderen magnetischen Hyperfein-Unterzustand des  $F=2$  Niveaus außer  $m_F=2$  fällt, da zum einen die Sättigungsintensität  $I_{\text{sat}} \propto 1/|\vec{d} \cdot \vec{\epsilon}|^2$  umgekehrt proportional zu Stärke des Übergangs ist [184] und es zum anderen zu einer Veränderung der Verstimmung des Kühlasers kommt. Bei gleichbleibender Laserleistung kann daher keine optimale Kühlung erreicht werden. Daher wird z.B. die Polarisation des Kühlasers, vor der Umwandlung von linearer in zirkuläre Polarisation, durch die Verwendung einer Kombination aus  $\lambda/2$ -Wellenplatte und  $\alpha$ -BBO Glan-Laser Polarisator mit Extinktionskoeffizient  $10^5 : 1$  gereinigt. Experimentell wird die Fluoreszenzrate eines einzelnen, in der Paulfalle gespeicherten,  $\text{Be}^+$ -Ions mittels der  $\lambda/2$ -Wellenplatte vor und der  $\lambda/4$ -Wellenplatte nach dem Cleanup-Polarisator maximiert.

Beim vorliegenden experimentellen Aufbau ist die Magnetfeldkontrolle in der Fallenregion der limitierende Faktor, so dass (in Kombination mit weiteren Heiz-Effekten) die erreichbaren minimalen  $\text{Be}^+$  Ionentemperaturen in der Regel leicht oberhalb des Doppler-Kühllimits lagen.

### Kühlaser-System

Mit Blick auf die natürliche Linienbreite des Übergangs in Beryllium von 19.4 MHz [127], wird eine Linienbreite des Kühlasers in der Größenordnung von  $< 1$  MHz, bei den erforderlichen 313 nm, angestrebt. Der Kühlaser-Aufbau basiert auf dem Konzept von Wilson et al. [186] und wurde auch in abgewandelter Form in [176] beschrieben.

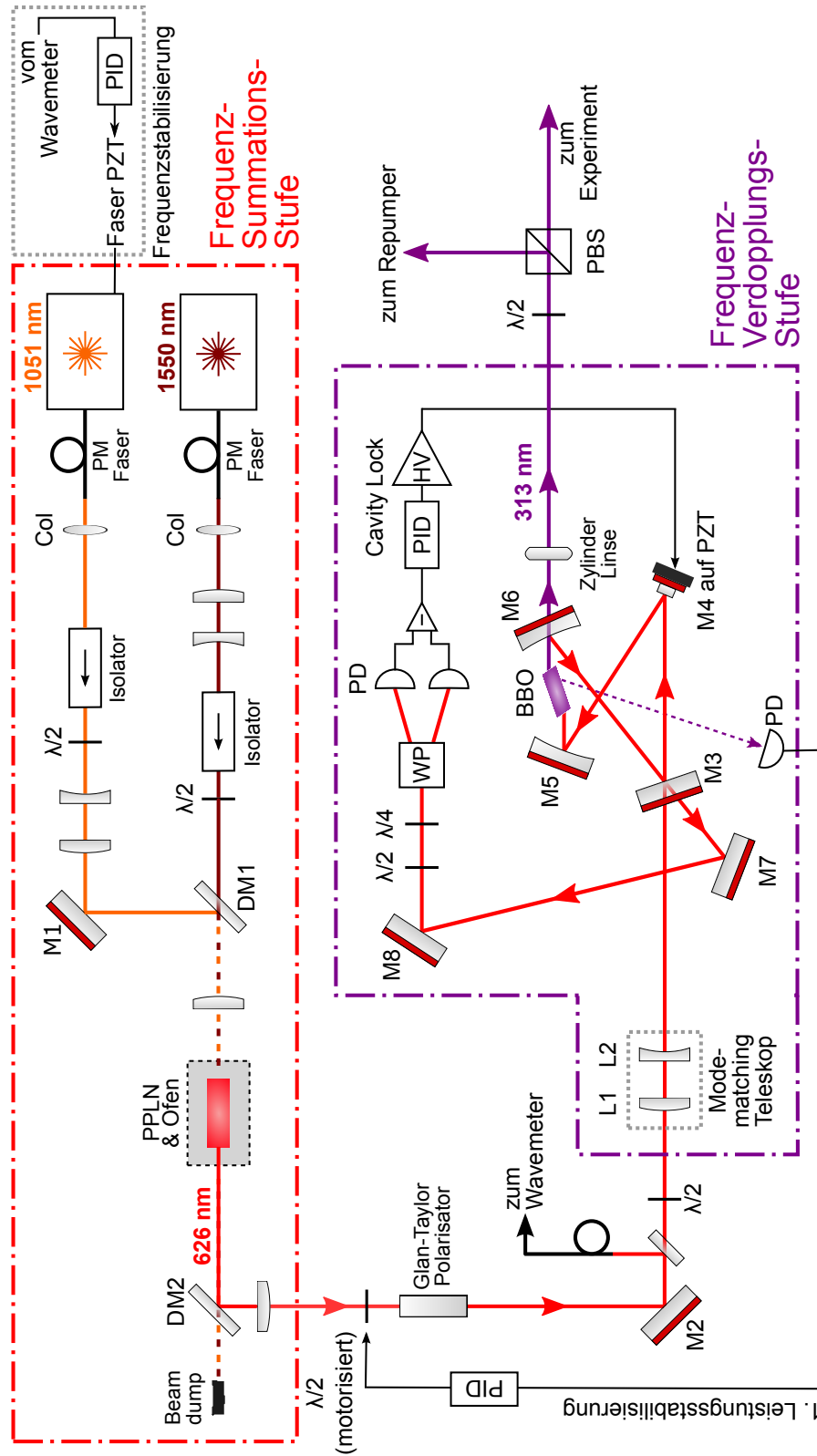
Zur Erzeugung von Licht der Wellenlänge 313 nm wird ein zweistufiger Prozess verwendet, bei dem nach [187] erst eine Frequenzsummierung (SFG) (engl. Sum frequency generation) und anschließend eine Frequenzverdopplung durchgeführt wird. Abbildung 1.35 zeigt eine schematische Zeichnung des Kühlaser-Aufbaus. Ausgangspunkte des Kühlaser-Systems sind zwei kommerzielle DFB-Faserlaser-Systeme der Firma NKT Photonics, mit je einer maximalen Ausgangsleistung von 5 W. Der Faserlaser Boostik Y10-5 hat eine Linienbreite von  $< 70$  kHz, bei einer Zentral-Wellenlänge von 1051.14 nm (CW single mode, PM output), während der zweite Faserlaser Boostik E15-5 eine Linienbreite von  $< 10$  kHz, bei einer Zentral-Wellenlänge von 1549.85 nm (CW single mode, PM output), besitzt. Im Experiment wurde die Wellenlänge des Kühlasers, zum Aufsuchen des  $\text{Be}^+$ -Kühlübergangs mit Hilfe des Boostik Y10-5 Piezos, durchgestimmt. Dieser lässt sich über ein DC-Netzteil bei 0 – 200 V im Bereich von ca. 12 pm durchstimmen. Zur Frequenzstabilisierung auf das Wavemeter wurde der 0 – 5 V PID-Ausgang des Wavemeters auf die volle DC-Bandbreite hochtransformiert. Die Frequenzen der beiden Faserlaser werden, bei dem hier verwendeten Ansatz, in einer ersten Stufe summiert und es wird Licht der Wellenlänge 626 nm erzeugt. Hierfür gilt:

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 \quad \text{bzw.} \quad \frac{1}{\lambda_3} = \frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2}. \quad (1.84)$$

Dieses alternative Vorgehen liefert etwa die doppelte Leistung bei 626 nm, wie bisherige Ansätze mit Farbstofflasern [186]. Durch Frequenzverdopplung des nun sichtbaren Lichtes, in einer zweiten Stufe, wird dementsprechend leistungsstärkeres UV-Licht produziert.

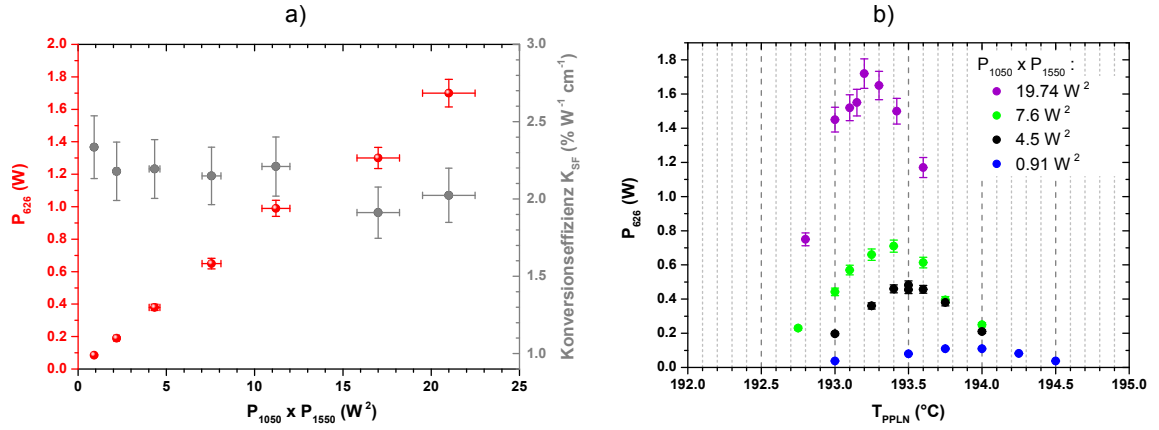
Das Licht aus den beiden Lasern wird über  $\lambda/2$ -Platten derart angepasst, dass man eine optimale Transmission durch die optischen Isolatoren, die die Strahlquellen vor Rückreflektionen schützen, erhält. Jeder Strahl wird je über ein Teleskop so angepasst, dass man optimal passende Strahlprofile im nicht-linearen Kristall, nach der Überlagerung beider Strahlen durch einen dichroitischen Spiegel, erhält. Die überlagerten Strahlen werden hier in einen PPLN-Kristall (engl. periodically poled lithium niobate crystal) fokussiert.

Der PPLN-Kristall hat eine Länge von 40 mm und wird im Experiment typischerweise bei einer Phasenanpassungs-Temperatur von 193.2 °C betrieben. Stimmt man die PPLN-Ofen Temperatur, zur Auffindung des Leistungsmaximums im Roten, durch, so beobachtet man die zu erwartende  $\text{sinc}^2$ -Funktion mit zwei kleinen Nebenmaxima und einem deutlich größeren Hauptmaximum. Temperatur-Scans um selbiges sind in Abbildung 1.36 b) für verschiedene Leistungsprodukte der IR-Laser zu sehen. Man erkennt, dass zum einen eine Temperaturstabilität des PPLN-Ofens in der

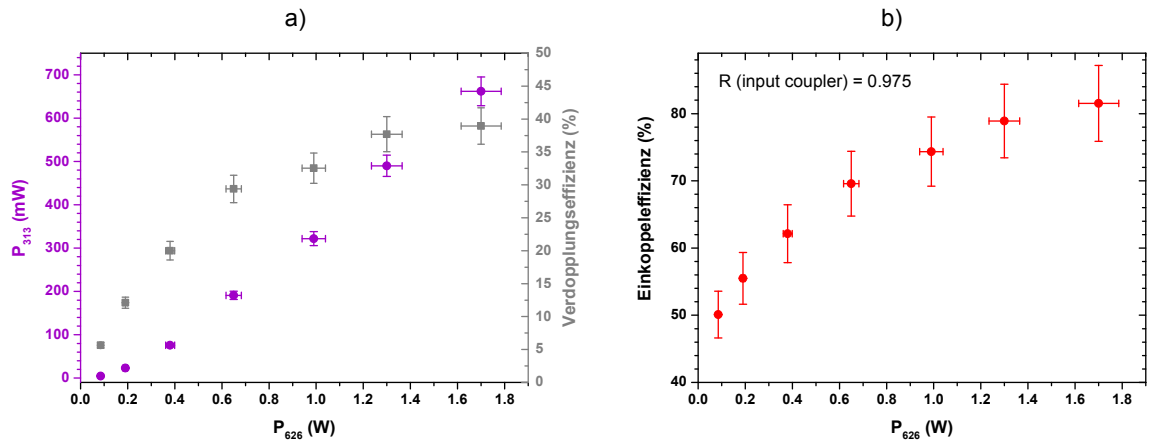


**Abbildung 1.35:** Schematische Zeichnung des Kühllaser-Systems zur Erzeugung von linear polarisiertem Laserlicht bei 313 nm (Design nach Wilson et al. [186]). Spiegel sind mit  $M_x$ , Linsen mit  $L_x$ , dichroitische Spiegel mit  $DM_x$  nach aufsteigender Nummerierung  $x$  entlang des Strahlenganges gekennzeichnet. Weitere Abkürzungen: PD - Photodiode, PZT - piezoelektrischer Aktor, WP - Wollaston Prisma, PM Faser - polarisationserhaltende Faser, Col - Kollimations-Optik, PBS - polarisierender Strahlteiler,  $\lambda/2$ ,  $\lambda/4$ , - Wellenplatten, PPLN und BBO bezeichnen die verwendeten nichtlinearen Kristalle.





**Abbildung 1.36:** a) Gemessene Leistung bei 626 nm in Abhängigkeit der, vor dem PPLN-Kristall, gemessenen Leistungen der beiden Grundwellen bei 1050 nm und 1550 nm (rot, linke Achse). Mit eingezeichnet sind die berechneten Werte der Konversionseffizienz pro Kristalllänge  $l_c$  (hier:  $l_c = 4 \text{ cm}$ ). b) Gemessene Leistung bei 626 nm in Abhängigkeit der PPLN-Ofentemperatur  $T_{PPLN}$ . Gezeigt sind Messkurven für verschiedene Leistungs-Produkte der Grundwellen.



**Abbildung 1.37:** a) Gemessene Leistung bei 313 nm in Abhängigkeit der, vor dem Verdopplungs-Resonator, gemessenen Leistung der Grundwelle bei 626 nm (lila, linke Achse). Mit eingetragen (grau, rechte Achse) ist die aus dem Leistungsverhältnis von Ober- zu Grundwelle berechnete Verdopplungseffizienz (bezogen auf das Gesamtsystem des nichtlinearen Kristalls im Überhöhungsresonator). b) Messwerte für die, durch Moden- und Impedanzanpassung festgelegte, Einkopplungseffizienz in den Verdopplungs-Resonator als Funktion der Leistung der Grundwelle bei 626 nm. Beide Messreihen wurden mit einem Einkoppelspiegel von  $R = 0.975$  aufgenommen (bei einer Reflektivität von  $R = 0.9995$  für die übrigen drei Resonatorspiegel).

Größenordnung 0.05 K, aufgrund der Schmalheit des Maximums, notwendig ist. Der verwendete Ofen plus Temperatur-Controller der Firma Covesion übererfüllt diese Bedingung mit einer Temperaturstabilität von 0.01 K. Zum anderen zeigt sich an den Messungen aus Abbildung 1.36 b), dass sich die Position des am Ofen einzustellenden Temperaturmaximums mit zunehmendem Leistungsprodukt der IR-Laser zu niedrigeren Temperaturen hin verschiebt. Dies ist aufgrund thermischer Effekte, verbunden mit der erhöhten IR-Leistung im Kristall, zu erwarten.

1.36 a) zeigt die gemessene Ausgangsleistung der erzeugten Summenfrequenz, sowie die gemessene Konversionseffizienz pro Kristalllänge, in Abhängigkeit vom Produkt der Eingangsleistungen der beiden IR-Laser. Die Konversionseffizienz ergibt sich aus einem linearen Fit zu:

$$\eta = \frac{P_{626}}{P_{1050}P_{1051}l_{Krist}} = (2.1 \pm 0.1)\% \text{ W}^{-1} \text{ cm}^{-1}. \quad (1.85)$$

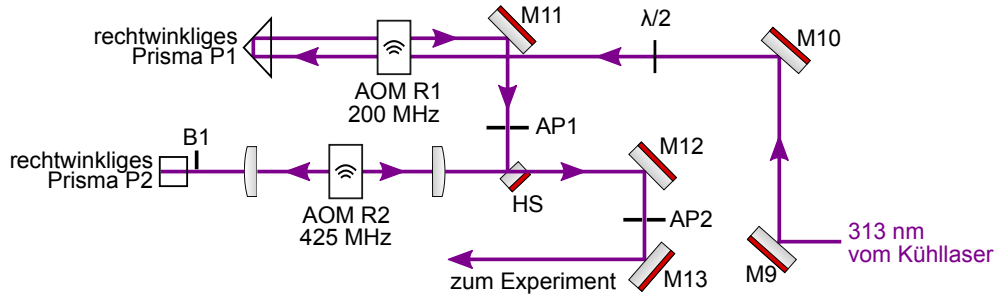
Dabei ist  $P$  jeweils die Leistung des Strahls der entsprechenden Wellenlänge und  $l_{Krist}$  die Länge des Kristalls. Die gemessene Konversionseffizienz ist leicht niedriger, aber gut vergleichbar mit dem in [186] angegebenen Sollwert.

Das 626 nm-Licht der Frequenzsummationsstufe wird anschließend in einem Überhöhungsresonator frequenzverdoppelt. Hierzu wird die Nichtlinearität eines im Brewsterwinkel geschnittenen BBO-Kristalls ausgenutzt. Der BBO-Kristall ist 10 mm lang und der Phasenanpassungswinkel beträgt für die vorliegende Wellenlänge 38.35°. Um die Länge des Überhöhungsresonators, mit Hilfe des, auf einen Piezokristall aufgeklebten, Spiegels M4 zu stabilisieren, wird anders als beim Photoionisationslaser, anstatt der PDH- die Hänsch-Couillaud-Stabilisierungstechnik [188] verwendet. Die gemessene Ausgangsleistung und Konversionseffizienz der Verdopplungsstufe sind in Abbildung 1.37 a), für verschiedene Eingangsleistungen  $P_{626}$ , aufgetragen. Wie zu erwarten nimmt die Ausgangsleistung linear mit der Eingangsleistung zu und erreicht bis zu 650 mW, entsprechend einer Verdopplungseffizienz von bis zu 42 %, was eine deutliche Verbesserung zu Aufbauten mit Farbstofflasern als Ausgangslaser darstellt.

Abbildung 1.37 b) zeigt die, durch Moden- und Impedanzanpassung festgelegte, vermessene Einkopplungseffizienz in den Verdopplungs-Resonator als Funktion der Leistung der Grundwelle bei 626 nm. Hier zeigt sich, dass die Impedanzanpassung, durch Ausprobieren verschieden stark reflektierender Einkoppelspiegel, für hohe Leistungen der Grundwelle durchgeführt wurde.

Zur Stabilisierung der Laserleistung wurde, im Rahmen einer, während dieser Promotionsforschung betreuten, Masterarbeit [189] eine zweistufige Leistungsstabilisierung realisiert. In Abbildung 1.35 ist die erste Leistungsstabilisierung zu sehen, die einen UV-Reflex im BBO-Kristall über eine Photodiode aufnimmt. Das entsprechende Fehlersignal steuert dann über eine PID-Regelung eine motorisierte  $\lambda/2$ -Platte vor einem polarisationssensitiven Element (Glan-Taylor-Polarisator).

Zusätzlich wird noch ein Repumper-Laser benötigt, wie er in Abbildung 1.38 dargestellt ist. Ein Teil des Laserlichtes vom Kühllaser wird mittels eines zweifachen Durchgangs durch zwei Akustooptische-Modulatoren frequenzverschoben, bevor es zum Experiment geleitet wird. Bei einer Effizienz von 15 % stehen, bei einer typi-

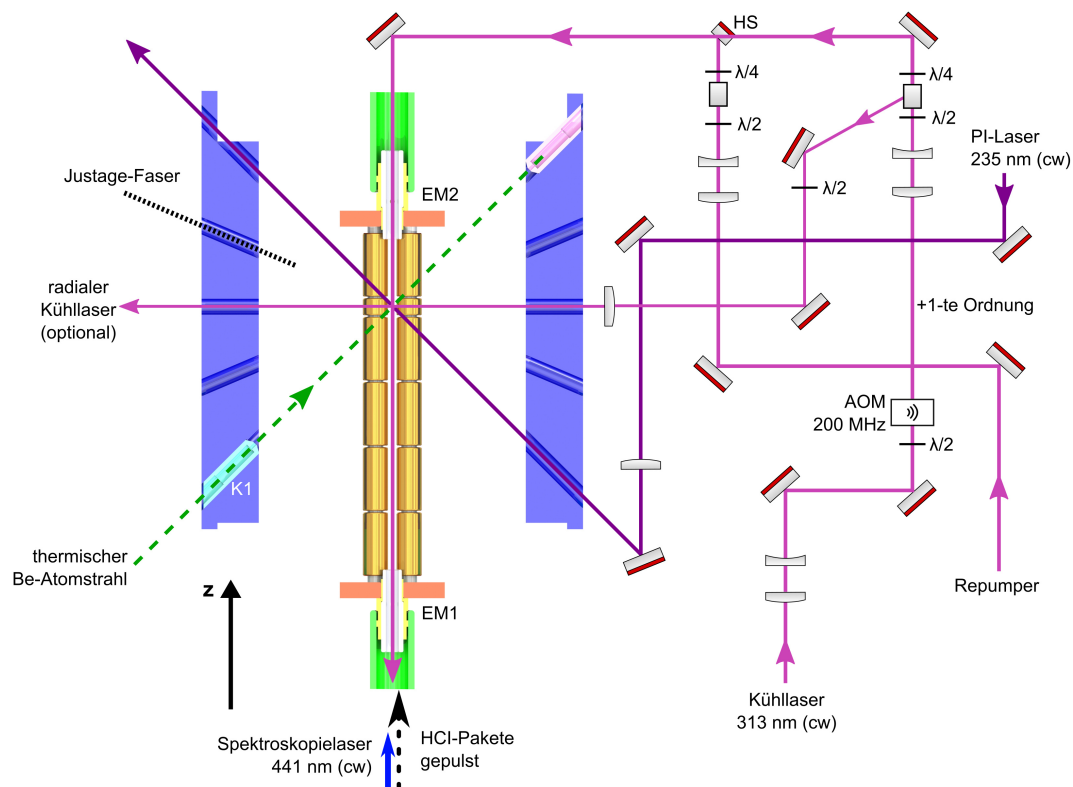


**Abbildung 1.38:** Schematische Zeichnung zur Erzeugung des Repumper-Laserlichtes mittels Frequenzverschiebung durch Akustooptische-Modulatoren. Spiegel sind mit  $Mx$ , Aperturen mit  $APx$ , AOMs mit  $Rx$  und rechtwinklige Prismen mit  $Px$  nach aufsteigender Nummerierung  $x$  entlang des Strahlenganges gekennzeichnet. Weitere Abkürzungen:  $\lambda/2$  - Wellenplatten, HS - Halbspiegel, B1 - Strahlblock. Die Effizienz des gesamten Repumper-Aufbaus beträgt maximal 15 % und wird mit einer typischen Eingangsleistung von 10 mW betrieben. Damit gehen ca. 1.5 mW Repumper-Licht Richtung Experiment.

schen Eingangsleistung von 10 mW, 1.5 mW zur Verfügung. Für die zweite Stufe der Leistungsstabilisierung des Kühllasers geht selbiger in der +1-ten Ordnung durch einen AOM mit 200 MHz RF (siehe Abbildung 1.39 im nächsten Unterkapitel). Da der Repumper insgesamt am Ort der Ionen, im Vergleich zum Kühllaser, um 1.25 GHz rotverschoben sein sollte, geht der abgezwigte Teil des Kühllaserstrahls in Abb. 1.38 durch den ersten AOM, mit ebenfalls 200 MHz RF, in der  $(0, -1)$ -ten Ordnung und durch den zweiten AOM in der  $(-1, -1)$ -ten Ordnung durch.

### Be<sup>+</sup>-Einzelionen und -Coulomb-Kristalle

Das UV-Licht des Photoionisations-, Kühl- und Repumper-Lasers wird je als Freistrahls von den vibrations- und thermisch-entkoppelten Laser-Aufbauten zu den, die Paulfalle umgebenden, optischen Tischen geführt. Dort wird der Photoionisations-Laser auf das Fallenzentrum fokussiert und ausgerichtet, so dass er den kollimierten Be-Atomstrahl unter ca. 90° kreuzt (crossed beam method, siehe Kapitel 1.5.1 und 1.5.2). Dadurch können Be<sup>+</sup>-Ionen, bei gleichzeitiger Einstrahlung von Kühllaser und Repumper effizient geladen und laser-gekühlt werden. Die Polarisation von Kühllaser und Repumper wird jeweils durch die Kombination von  $\lambda/2$ -Wellenplatte und BBO-cleanup Polarisator gereinigt und anschließend durch eine  $\lambda/4$ -Wellenplatte in zirkular polarisiertes Licht umgewandelt (zur Notwendigkeit dieses Vorgehens siehe Kapitel 1.5.3 Seite 76 und folgende). Anschließend werden die beiden Laserstrahlen mittels eines Halbspiegels unter einem leichten Winkel überlagert und anschließend mit einem gemeinsamen Spiegel entlang der Symmetrieachse der Paulfalle durch das Fallenzentrum geleitet. Hier wird ebenfalls die herausziehbare Faser zur Grob-



**Abbildung 1.39:** Schematische Skizze (nicht maßstabsgetreu) der Strahlverläufe von Lasern und Atomen. EM1 und EM2 bezeichnen zwei elektrostatische Spiegelelektroden für das Fangen der HCIs in der Paulfalle, die direkt von weiteren ionenoptischen Elementen (hellgrün) ins Innere der Paulfalle übergehen. Bei K1 handelt es sich um das Kollimationsröhrchen für den Be-Atomstrahl (vergleiche Abbildung 1.25).

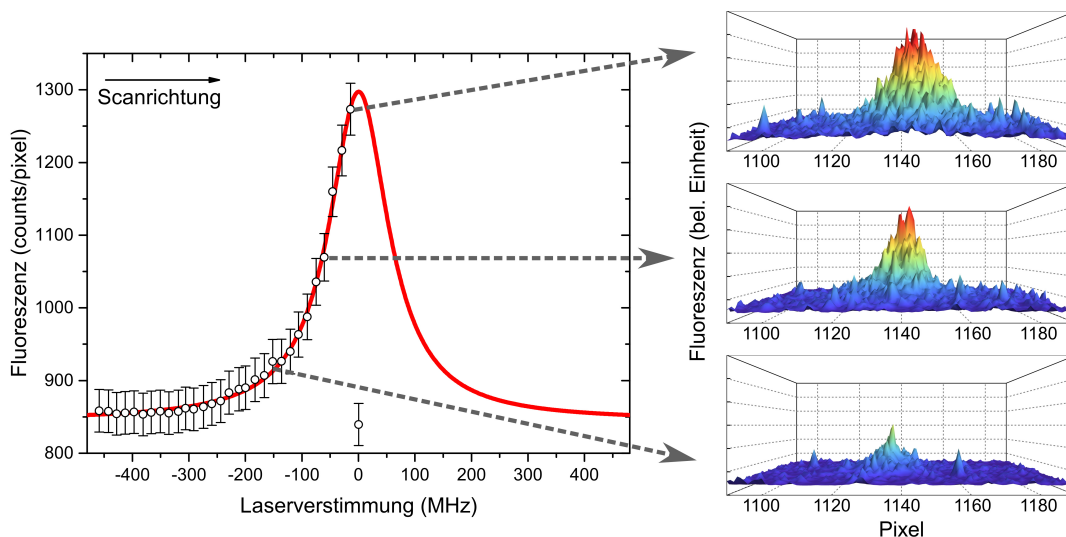
ausrichtung der Laserstrahlen auf das Fallenzentrum verwendet. Die Feinjustage erfolgt an Hand der gespeicherten Ionen-Kristalle. Für die, im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten, Experimente wurde mit nur einem Kühllaserstrahl entlang der Paulfallen-Achse gearbeitet, der stets in  $-z$ -Richtung verlief. Nur für einen kurzen Zwischentest, bei der Charakterisierung der anfänglich vorhandenen Excess micromotion, wurde die Richtung des Kühllaserstrahls kurzzeitig vertauscht. Um die Effekte des Strahlungsdruckes zu eliminieren, kann prinzipiell mit zwei gegenläufigen Kühllaserstrahlen entlang der Paulfallenachse gearbeitet werden. Zusätzlich wurde je nach Bedarf ein radialer Kühllaserstrahl (ohne Repumper) unter  $90^\circ$  zur Symmetrieachse auf das Fallenzentrum ausgerichtet, um insbesondere einzelne  $\text{Be}^+$ -Ionen auch radial stärker zu kühlen. Die maximalen Winkel, die Kühllaserstrahl und Repumper in Bezug auf die x- und y-Achsen der Falle haben können betragen  $\alpha_x, \alpha_y < 0.3^\circ$ . Diese Winkel-Limitierung ist durch die relativ lange Strecke von 2.58 m bis zum Vakuumfenster am Ende der HCI-Beamline gegeben, durch den die Laser (zur Verminderung von Streulicht) wieder austreten sollen, in Kombination mit den Durchmessern der beiden elektrostatischen Spiegel-Elektroden von 4 mm, welche sich an Ein- und Ausgang des Paulfallen-Elektrodensystems befinden. Je nach Ausnutzung dieses Winkelspielraums ist die effektive Kühlung der radialen Moden eines einzelnen  $\text{Be}^+$ -Ions eingeschränkt und es kommt zu einer auf der CCD beobachtbaren radialen Aufweitung der Fluoreszenz. Für größere  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalle wird kein Seiten-Kühllaser benötigt, da hier die einzelnen Freiheitsgrade durch die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Ionen stark gekoppelt sind.

Auf dem Lasertisch vor der Paulfalle besitzt der Kühllaserstrahl in TEM00 Mode einen  $1/e^2$ -Durchmesser von 3.02 mm, dieser wird durch ein Galilei-Teleskop halbiert, um die maximale Beugungseffizienz beim Durchgang durch den AOM (RF von 200 MHz, identisch zu dem Modell R1 in Abbildung 1.38) zu erreichen. Das Strahlprofil der +1-ten Ordnung des AOMs wird anschließend durch ein weiteres Galilei-Teleskop auf einen  $1/e^2$ -Durchmesser von  $692 \mu\text{m}$  am Ort der Falle reduziert. Der Kühllaserstrahl geht nahezu kollimiert durch den ca. 2.58 m langen Aufbau, während der Repumper-Strahl mittels eines Galilei-Teleskops leicht auf das Fallenzentrum fokussiert wird und dort einen  $1/e^2$ -Strahldurchmesser von  $511 \mu\text{m}$  besitzt. Typische verwendete Laserleistungen für Kühllaser und Repumper belaufen sich auf 5 mW bzw. 200  $\mu\text{W}$ . Es ergibt sich somit ein Sättigungsparameter von  $s \approx 30$  für den  $^2S_{1/2}(F = 2, m_F = +2) \longleftrightarrow ^2P_{3/2}(m_J = 3/2, m_I = 3/2)$  Übergang in  $\text{Be}^+$ . Die vorliegenden Experimente werden folglich im stark sättigungsverbreiteten Regime des  $\text{Be}^+$  Kühlübergangs durchgeführt, bei typischen Linienbreiten von  $\Gamma_{eff} = \sqrt{1+s}\Gamma \approx 5.6 \times \Gamma = 2\pi \times 108 \text{ MHz}$ . Dies hat den Vorteil für die HCI-Experimente einer robusten Kühlung mit schnellen Rückkühlzeiten nach kurzfristigen Aufheizungen des Kristalls. Mit diesen Parametern entspricht auch die  $\text{Be}^+$ -Laderate annähernd der Photoionisationsrate in der Fallenregion. Alternativ könnte man einen separat deutlich rot-verstimmbaren weiteren Kühllaserstrahl abzweigen und parallel zu dem Haupt-Kühllaserstrahl durch die Falle führen. Dieser Strahl würde dann getrennt die Aufgabe des schnellen Ladens und Rückkühlens übernehmen, während der Haupt-Kühllaserstrahl mit geringerer Intensität zu niedrigeren

Doppler-Kühllimits führen würde. Diese Variante wird für die nachfolgenden QLS-Experimente angestrebt. Für die hier diskutierten Experimente zum erstmaligen sympathetischen Kühlen von HCs in einer Paulfalle, sollten als erstes Ziel Temperaturen im mK Bereich, in der Nähe des Doppler-Kühl-Limits von  $\text{Be}^+$  erreicht werden. Da dies mit den oben genannten Laserparametern möglich ist (siehe Grafik 1.11 aus Kapitel 1.2), wurde die vereinfachte Variante für die vorliegenden Experimente gewählt.

Ob die erwünschte Ionentemperatur unter den gegebenen experimentellen Bedingungen erreicht wird, kann unter anderem durch das vermessene Linienprofil des Kühlübergangs abgeschätzt werden [190, 191]. Dazu wird ein einzelnes  $\text{Be}^+$ -Ion in der Paulfalle gespeichert und lasergekühlt. Die Fluoreszenz bei 313 nm wurde hierbei, mittels Variante B von Fallenelektronik und Abbildungssystem, durch die CCD-Kamera detektiert. Da die Kühllaser-Frequenz über das Wavemeter vermessen und indirekt geregelt werden kann, wurde ein LabView-Programm geschrieben, welches schrittweise die Laserfrequenz hochregelt und nach jedem Schritt ein CCD-Bild mit einstellbarer Belichtungszeit aufnimmt. Für die CCD-Aufnahme wird dann ein interessanter Bereich (engl. region of interest - ROI) definiert, in den die Ionen-Fluoreszenz abgebildet wird. Hier wird die Anzahl der Zählereignisse pro Pixel bestimmt und zusammen mit der aktuellen Laserfrequenz gespeichert.

Wie zu sehen ist (Abbildung 1.40), ergibt der Frequenz-Scan des Kühllasers für

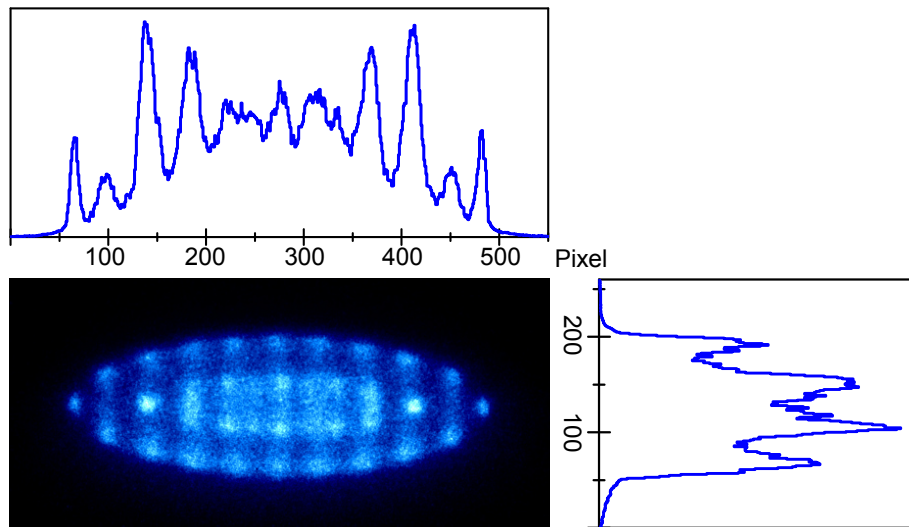


**Abbildung 1.40:** Messpunkte des automatisierten Frequenz-Scans des Kühllasers, bei gleichzeitiger Aufnahme von CCD-Bildern eines einzelnen gespeicherten  $\text{Be}^+$ -Ions. Die linke Abbildung zeigt die Intensität der Ionen-Fluoreszenz in Abhängigkeit der Laserverstimmung von der atomaren Resonanz des ruhenden Ions. Die Grafiken rechts sind dreidimensionale Darstellungen der Intensitätsverteilung der jeweiligen CCD-Bilder des  $\text{Be}^+$ -Ions. Die Pfeile stellen Beziehungen zwischen CCD-Bildern und entsprechenden Laserverstimmungen her. Die CCD-Belichtungszeit pro Frequenzschritt beträgt 1 s. Die Messung wurde durchgeführt mit den Varianten B von Paulfallelektronik und Abbildungssystem. Ein Pixel entspricht hier  $0.94(3) \mu\text{m}$ .

ein einzelnes  $\text{Be}^+$ -Ion ein asymmetrisches Linienprofil. Da in diesem Fall ein einzelner Laserstrahl für die Spektroskopie des Übergangs und das Kühlen des Ions zuständig ist, verändern sich mit dem Durchstimmen der Laserfrequenz auch die Kühlbedingungen für das Ion. Die Frequenz wird von, bzgl. der atomaren Resonanzfrequenz des ruhenden Atoms, rot-verstimmten Werten Richtung atomare Resonanzfrequenz verfahren. Ab Erreichen der Resonanzfrequenz wird das Ion durch den Kühllaser aufgeheizt und kann dadurch aus dem Fallenpotential getrieben werden. Durch den Verlust des Ions aus der Falle bricht in Abb. 1.40 die detektierte Fluoreszenz plötzlich, bei Erreichen der Resonanzfrequenz, ein. Aus Abbildung 1.11 in Kapitel 1.2.1 zum Doppler-Kühllimit bei verschiedenen Laserparametern erkennt man, dass die minimal erreichbaren Ionentemperaturen über den Anstieg des Linienprofils im Bereich  $\delta = -10\Gamma, \dots, -3/4\Gamma$  von 2 mK bis 5.0 mK variieren, so dass der Einfluss der Temperaturvariation auf das Linienprofil in erster Näherung vernachlässigt werden kann. Für ein einzelnes, lasergekühltes Ion kann im Mittel, in axialer Richtung von einer Maxwell-Boltzmann Verteilung der Geschwindigkeiten ausgegangen werden [87,192] (Zeit- statt Ensemble-Mittel für ein einzelnes Ion bzw. Besetzungsverteilung der Zustände im harmonischen Fallenpotential). Damit bietet es sich an, einen Voigt-Fit auf das vermessene Linienprofil anzuwenden. Für den Fall aus Abbildung 1.40 ergibt ein Voigt-Fit einen Gauß-Anteil, der innerhalb des Fehlers konsistent mit Null ist. Daher ist in Abbildung ein reiner Lorentz-Fit mit einer FWHM Lorentz-Breite von 128(5) MHz zu sehen. Dies entspricht der mit den verwendeten Laserparametern von  $P(\infty) \approx 6.7 \text{ mW}$  und damit  $s \approx 43$  im Rahmen der Fehler erwarteten sättigungsverbreiterten effektiven Linienbreite von 129 MHz. Der Voigt-Fit zusammen mit der hohen Güte eines reinen Lorentz-Fits lässt den Schluss zu, dass die Gaußbreite wesentlich kleiner als die Lorentz-Breite sein muss. Durchführen mehrerer Voigt-Fits mit festgehaltenem Gauß-Anteil und Beobachtung, wann es zu einer sichtbaren Abweichung von dem freien Voigt- bzw. reinen Lorentz-Fit kommt führt zu einer Abschätzung der Ionentemperatur von  $2_{-0}^{+15} \text{ mK}$ . Dabei ist die untere Grenze durch die bei dem verwendeten Sättigungsparameter minimal mögliche Doppler-Kühllimit-Temperatur von 2.1 mK gegeben.

Eine Möglichkeit für genauere Temperatur- und Peakpositions-Bestimmungen mittels Frequenz-Scan des Lasers bei 313 nm wäre z.B. durch die Verwendung von  $\text{Be}^+$ -Ionenketten und eines weiteren getrennt durchstimmbaren Zweiges des Kühllasers möglich (analog zu dem Vorgehen in [191]). Durch direktes Laserkühlen von Ionen am einen Ende der Kette, würden die übrigen Ionen sympathetisch gekühlt. Strahlt man dann den getrennten Kühllaser-Zweig auf die Ionenkette ein, stimmt dessen Frequenz durch und nimmt CCD-Aufnahmen der Fluoreszenz auf, so kann man durch die Positionsempfindlichkeit der CCD-Aufnahmen gezielt nur das Linienprofil für das  $\text{Be}^+$ -Ion am anderen Ende der Kette vermessen. Dadurch separiert man die Spektroskopie vom Kühlprozess.

Des Weiteren zeigen die in Abbildung 1.40 rechts exemplarisch präsentierten positionsempfindlichen Intensitätsmatrizen ( $\hat{=}$  CCD-Aufnahmen) des einzelnen  $\text{Be}^+$ -Ions, dass die 3-dimensionale Intensitätsverteilung der Ionen-Fluoreszenz für Laserfrequenzen in der Nähe der atomaren Resonanzfrequenz an Breite zunimmt und



**Abbildung 1.41:** Ausschnitt einer CCD-Aufnahme der Fluoreszenz bei 313 nm eines  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalls (1 s Belichtungszeit). Zusätzlich sind die horizontale und vertikale Projektion eines je 17 Pixel breiten Streifens um das Fallenzentrum zu sehen. Der Kristall ist  $398(13) \mu\text{m}$  lang (Umrechnungsfaktor:  $1\text{Pixel} \hat{=} 0.94(3) \mu\text{m}$ ) und besteht aus ca.  $65(9)$   $\text{Be}^+$ -Ionen. Die Aufnahme wurde mit den Varianten B von Fallenelektronik (minimierte axiale Mikrobewegung) und Abbildungssystem (erhöhte Lichtsammeleffizienz) aufgenommen. Die Fallenpotentiale wurden durch  $U_{DC} = 521(60) \text{ mV}$  ( $f_z = 98(6) \text{ kHz}$ ) und  $U_{RF} = 59(3) \text{ V}$  (peak-to-peak,  $f_r = 205(12) \text{ kHz}$ ) erzeugt (vergleiche Abbildung 1.2 und die darin enthaltenen Definitionen). Kühlaserparameter:  $s \approx 15$ ,  $\Delta \approx -5\Gamma$ .

sich das Intensitäts-Maximum mit zunehmender Streurate in den Abbildungen nach rechts, und damit kollinear zum Kühlaserstrahl, verschiebt. Die Verbreiterung der Verteilung kommt durch eine Temperaturerhöhung in Richtung Maximum des Liniensprofils (vergleiche Abbildung 1.11 in Kapitel 1.2.1), während die Verschiebung der Ionenposition mit zunehmender Fluoreszenzrate durch ein veränderliches Gleichgewicht zwischen Laserdruckkraft und Kraft auf das Ion im harmonischen Oszillator des Fallenpotentials bedingt ist. Mit der Fluoreszenzrate  $R = \Gamma \rho_{ee}$  erhält man folglich für die Verschiebung  $z$  des einzelnen Ions entlang der Fallenachse die Beziehung

$$\hbar k R = M \omega_z^2 z. \quad (1.86)$$

Gleichung (1.86) kann z.B. dazu genutzt werden, die Lichtsammeleffizienz des Abbildungssystems bei 313 nm zu kalibrieren. Indem man bei experimentell bekannter axialer Fallenfrequenz die Verschiebung eines einzelnen  $\text{Be}^+$ -Ions entlang der Fallenachse auf den CCD-Bildern vermisst. Dann kann man aus Gleichung (1.86) die Streurrate  $R$  bestimmen und gleichzeitig mit CCD oder PMT die Photonenrate messen. Das prozentuale Verhältnis liefert dann die gesamte Effizienz des Abbildungssystems.

Diese Art der Verwendung der Kühlionen zur Fallencharakterisierung wird typischerweise für die meisten Speicher-Parameter angewandt. Durch das Fallendesign zusammen mit entsprechenden Simulationen sind zwar die idealen Fallenparame-



ter im Prinzip bekannt und während der Inbetriebnahmen der Paulfalle (z.B. nach Umbaumaßnahmen) werden zusätzlich entsprechende Kalibrationskurven, z.B. für die angelegten DC- und RF-Spannungen, aufgenommen. Letztendlich besteht die genaueste und flexibelste Methode der Fallencharakterisierung jedoch darin, die gespeicherten Ionen selbst als sensitive Sensoren für ihre Umgebung zu verwenden. Liegen zum Beispiel zwei benachbarte Mittelelektroden der Hauptfalle je auf dem gleichen um 1 mV höheren DC-Potential von 129.501 mV als die diesen beiden gegenüberliegenden Hauptfallenelektroden, so würde ein einzelnes  $\text{Be}^+$ -Ion, bei einer radialen Fallenfrequenz von  $f_r = 200$  kHz, um  $1\text{ }\mu\text{m}$  radial aus der Fallenmitte verschoben werden. Dies wäre entweder direkt auf dem CCD-Bild beobachtbar oder könnte durch Modulation der RF-Spannung und gleichzeitiger Detektion des Fluoreszenzlichtes oder durch Micromotion-Messungen mit radialem Kühllaser mit dem PMT gemessen werden.

Lädt man mehrere  $\text{Be}^+$ -Ionen in die Hauptfallenregion der Paulfalle, so erhält man, für typische Fallenfrequenzen  $f_r > f_z$ , einen reinen  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall, der die Form eines prolaten Rotationsellipsoids besitzt, wie beispielhaft in Abbildung 1.41 gezeigt wird.



---

## Präparation kalter hochgeladener Ionen

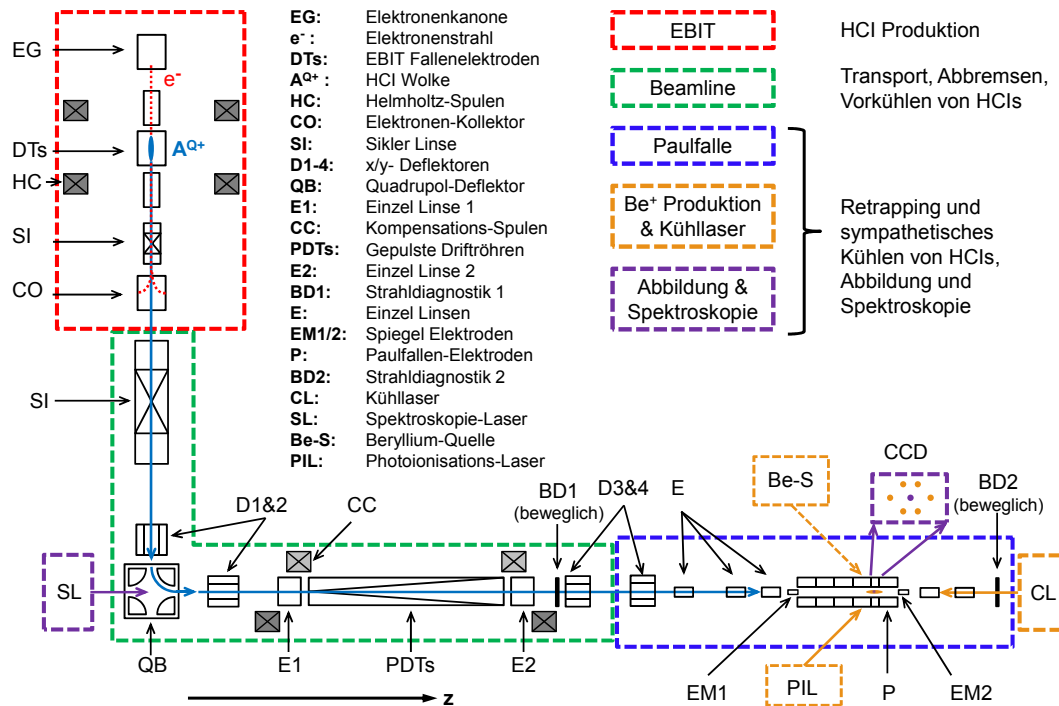
---

*„Testing can never demonstrate the absence of errors,  
only their presence.“*  
Edsger W. Dijkstra

Um die Limitierungen laserspektroskopischer Methoden, angewandt auf HCIs in situ in einer EBIT zu überwinden, bietet es sich an, die energetische Produktion hochgeladener Ionen von dem Ort ihrer Kühlung und spektroskopischen Untersuchung zu trennen. Im Hinblick auf die erwünschte Anwendung von Quantenlogik-Spektroskopie auf HCIs, werden diese aus der EBIT extrahiert und in eine Paulfalle injiziert. Wobei Letztere sich über die vergangenen Jahrzehnte zum Arbeitspferd optischer Uhren, mit einem einfach geladenen Ion als Taktgeber, entwickelt hat.

Verschiedene Methoden zur Injektion extern, mittels Beschleunigern erzeugter einfach geladener Ionen wurden mehrfach im Zusammenhang mit Paulfallen- $\beta$ -Zerfall- oder Penningfallen-Massenmessungen verwendet. Dort basiert die externe Ionen-Injektion auf der Kühlung durch Kollisionen mit einem neutralem Puffergas [128, 193–196]. Diese Techniken sind, aufgrund der Verluste durch Ladungsaustausch, nicht auf die externe HCI-Injektion übertragbar. Andere Arbeiten zur Injektion hochgeladener Ionen in Penningfallen arbeiten mit Widerstands-Kühlung [47, 197, 198] oder vorgeschlagener Elektronen-Kühlung [199]. Diese beiden Techniken sind durch die erreichbaren HCI-Temperaturen limitiert bzw. nicht für Paulfallen anwendbar. Eine zur Kühlung hochgeladener Ionen anwendbare Kühl-Strategie ist das sympathetische Kühlen [43, 47, 197], welches, vor dieser Arbeit, erstmals zur Kühlung hochgeladener Xenon-Ionen in einer Penningfalle verwendet wurde [197]. Hier wurden die HCIs extern in die Penningfalle injiziert und, vor der Anwendung sympathetischen Kühlens, resistiv gekühlt.

In der vorliegenden Arbeit wurde erstmals eine EBIT, als HCI-Quelle, mit einer kryogenen Paulfalle verbunden, sowie ein Kühlionen-Coulomb-Kristall zum sympa-



**Abbildung 2.1:** Schematische Skizze mit allen relevanten Elektrodenanordnungen und Magnetfeld-Spulen, die zur Präparation kalter, stark lokalisierter HCIs in einer Paulfalle notwendig sind. Das Schema wird als Referenz für die folgenden Abschnitte verwendet. Teilweise entnommen aus der, während dieser Promotionsforschung, erstellten Veröffentlichung [200].

thetischen Stoppen der HCIs verwendet. Entscheidende Schnittstelle zwischen EBIT und Paulfalle ist eine Beamline, die zum Abbremsen und Vorkühlen extrahierter HCIs genutzt wird. Abbildung 2.1 gibt eine Übersicht der relevanten Elektroden- und Spulen-Konfigurationen, von EBIT bis Paulfalle, und dient als Referenz-Grafik für alle folgenden Unterkapitel.

Dem Weg der HCIs aus Abb. 2.1 folgend, werden selbige mit Ladung  $Qe$  in der EBIT produziert und von dort, gepulst, mit typischen longitudinalen, mittleren kinetischen Energien von  $680 \text{ eV}/Q$  extrahiert. Die longitudinale Energieverteilung kann als gaußförmig angenommen werden, mit typ. Halbwertsbreiten von  $25 \text{ eV}/Q$ . Anschließend findet ein dreistufiger Abbrems- und Kühl-Vorgang der extrahierten HCI-Pakete statt, bis selbige in einer mikroskopischen Region der kryogenen Paulfalle gespeichert sind und innerhalb des Kühllionen-Coulomb-Kristalls ko-kristallisieren. In einem ersten Schritt werden die  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpakete mittels zweier gezackter, elektrodynamisch betriebener, Abbremsselektroden verlangsamt und vorgekühlt. Anschließend werden die HCI-Pakete elektrostatisch bei Injektion in die Paulfalle auf mittlere kinetische Energien  $< 1 \text{ eV}/Q$  abgebremsst. Dies geschieht durch Anlegen einer einheitlichen DC-Abbremsspannung an alle Paulfallenelektroden. Dies erlaubt, zusammen mit einem implementierten Reflektionszyklus, das Wiedereinfangen und die ungekühlte Speicherung von HCIs in der Paulfalle. In einem letzten Schritt werden

---

die HCIs vollständig, durch Coulomb-Stöße in einem kontinuierlich lasergekühlten  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall, abgebremst. Das vollständige Abbremsen von ihrer anfänglichen Injektionsenergie auf thermische Energien  $< 1 \mu\text{eV}/Q$ , die typ. für kristallisierte Ionen-Ensemble sind, führt letztendlich zur Ko-Kristallisation der  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen im Kühllionen-Kristall.

Damit wird der, vor der HCI-Injektion, in der Paulfalle gespeicherte  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall, sowohl zum Stoppen der HCI-Bewegung (Verlust der restlichen Projektilenergie bis auf thermische Energien) als auch zum anschließend sympathetischen Kühlen bis zur Ko-Kristallisation verwendet. Zwar ist das Bremsvermögen der Kühllionen-Kristalle abhängig von Ladung und Masse der injizierten HCIs, dies stellt jedoch keine grundlegende Limitierung bezüglich des  $Q/M$ -Verhältnisses der HCIs dar. Wie experimentell getestet, kann z.B. der Implantationsprozess innerhalb weniger Minuten auf einen anderen Ladungszustand von Argon umgestellt werden, da hierzu im Wesentlichen die Schaltzeitpunkte der gepulsten Elektroden angepasst werden müssen. Auch beim Übergang zu einem anderen Element besteht keine fundamentale Limitierung. Die vorgestellte Methode eröffnet somit ein neues Feld der Untersuchung kalter hochgeladener Ionen, in der präzise kontrollierbaren Umgebung einer Paulfalle.

Im Folgenden werden zuerst theoretische Vorüberlegungen zur Extraktion von HCIs aus einer EBIT und dem Bremsvermögen von Kühllionen-Coulomb-Kristallen in den Unterkapiteln 2.1.1 und 2.1.2 angestellt. Letztere führen zur Notwendigkeit eines Multipass-Konzeptes für die Implantation von HCIs, sowie zu einer oberen Grenze für die anfängliche Energie der HCIs bei Injektion in die Paulfalle. Kapitel 2.2 behandelt die essentiellen Details zur HCI-Extraktion aus der EBIT, während Kapitel 2.3 Abbremsen und Vorkühlen der extrahierten HCI-Pakete mittels eines theoretischen, analytischen Modells im Vergleich mit Simulationen, sowie Charakterisierungs-Messungen diskutiert. Aufbau und Schema zum Wiedereinfangen der HCIs in der linearen Paulfalle werden in Kapitel 2.4, zusammen mit entsprechenden Messungen als notwendige Voraussetzung für die Implantation von HCIs in Kühllionen-Kristallen, dargestellt. Eine Kurzfassung folgt in Kapitel 2.5, in dem auch die wesentlichen HCI-Energien und die Effizienzen der einzelnen Schritte des Implantations-Prozesses zusammen gefasst werden. Die restlichen Unterkapitel befassen sich mit Nachweis- und Charakterisierung der erzeugten Mischkristalle - vom Übergang größerer Coulomb-Mischkristalle zu Ionenketten -, bestehend aus zwei Ionensorten, zur Bestimmung des Ladungszustandes und der Temperatur der implantierten HCIs.

## 2.1 Theoretische Vorüberlegungen

### 2.1.1 Extraktion von HCIs aus einer EBIT

Das, in der EBIT mittels Elektronenstoßionisation, erzeugte Ensemble hochgeladener Ionen wird, in den Experimenten dieser Arbeit, gepulst aus der EBIT extrahiert. Hierfür wird an die zentrale Fallenelektrode der EBIT ein kurzer, positiver Spannungspuls  $V_{set}$  angelegt, der wesentlich höher als die Spannungsdifferenz zwischen zentraler Elektrode und den umgebenden Elektroden ist. Das Extraktionspotential  $V_{extr}$  von dem aus die HCIs starten ist dabei nicht direkt mit  $V_{set}$  gleichzusetzen. Dies kommt hauptsächlich durch Raumladungseffekte  $V_{sc}$  des Elektronenstrahls, sowie deren teilweise Kompensation  $\xi$  durch die positiv geladene Ionenwolke, zustande. Die HCI-Pakete starten von einem Extraktionspotential

$$V_{extr} = (V_{set} + (1 - \xi) V_{sc}) \kappa_e, \quad (2.1)$$

wobei der Faktor  $\kappa_e$  beschreibt, dass die Ionen die Falle verlassen können, bevor der volle, eingestellte Wert von  $V_{set}$  erreicht ist.

Der Wert von  $V_{extr}$  sollte angemessen hoch sein, um die transversale Emittanz  $\epsilon_{x/y,rms}$  der extrahierten HCI-Pakete, als Voraussetzung für einen effizienten Transport zur Paulfalle, zu minimieren. Die transversale Emittanz eines Unterraums ( $x$  oder  $y$ ), die neben der Ortsverteilung durch die thermische Geschwindigkeitsverteilung der Ionen in der Produktions-Falle verursacht ist, kann dabei nach [201] durch

$$\epsilon_{x/y,rms} = \sigma_{x/y} \sqrt{\frac{k_B T_{HCI}}{2eQ_{HCI} V_{extr}}} \quad (2.2)$$

beschrieben werden. In Gleichung (2.2) bezeichnet  $T_{HCI}$  die Temperatur des HCI-Ensembles vor der Extraktion,  $k_B$  die Boltzmann-Konstante und  $\sigma_{x/y}$  die mittlere transversale Breite der Ortsverteilung der HCIs mit Ladung  $eQ_{HCI}$ . Der Beitrag des Magnetfeldes zur transversalen Gesamt-emittanz ist für die Extraktion aus EBITs klein [201], womit Gleichung (2.2) zum Ausdruck für die transversale Gesamt-emittanz eines Unterraums wird.

Die Temperatur des HCI-Ensembles vor der Extraktion, und damit nach Gleichung (2.2) auch die transversale Emittanz, kann entweder durch Verdampfungskühlung [201] oder durch Reduktion der Aufheizung durch Ion-Elektron-Stöße (Verwendung eines relativ niedrigen Stroms des Elektronenstrahls), verringert werden. Des Weiteren kann die transversale Emittanz durch Verkleinerung von  $\sigma_{x/y}$ , erreichbar durch Erhöhung des EBIT-Magnetfeldes, ebenfalls verkleinert werden. Für einen gegebenen experimentellen Aufbau ist der Bereich, über den  $T_{HCI}$  und  $\sigma_{x/y}$  verändert werden können, limitiert. Daher wird der Parameter der Extraktionsenergie zur Minimierung der transversalen Emittanz gewählt.

Für den experimentellen Aufbau dieser Arbeit, werden HCI-Pakete typischerweise mit einer näherungsweise gaußförmigen, longitudinalen kinetischen Energieverteilung mit einem Mittelwert von  $\bar{V}_{extr} = 680 \text{ eV} / Q_{HCI}$  und einer FWHM Breite von  $25 \text{ eV} / Q_{HCI}$  extrahiert. Betrachtet man diese Werte im Vergleich zu typischen

Paulfallentiefen von ein paar 10 eV, so ist klar, dass die mittlere kinetische Energie der extrahierten  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpakete um mindestens zwei Größenordnungen, vor Injektion in die Paulfalle, verringert werden muss. Zusätzlich muss die Breite der Energieverteilung reduziert werden, um die Anzahl an  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen in einem, für die Implantation in die  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalle geeigneten, kinetischen Energieintervall zu erhöhen. Dies führt entweder zu einer Erhöhung der Implantationsrate oder zu einer Lockerung der Anforderungen an die Injektion der HCIs in die Paulfalle bzgl. der geometrischen Akzeptanz selbiger.

### 2.1.2 Bremsvermögen von $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristallen

Um ein Konzept für den Prozess der Implantation extern produzierter HCIs in lasergekühlte Kühllionen-Coulomb-Kristalle entwickeln zu können, muss zunächst die Abbremslänge für ein, in den Coulomb-Kristall einlaufendes Projektil-HCI, in Abhängigkeit der Injektionsenergie des HCIs, bestimmt werden. Im Folgenden wird eine Abschätzung der Abbremslänge  $s_{\text{stop}}$  aufgrund des Bremsvermögens eines  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalls diskutiert und zuerst eine einfache Abschätzung für die obere Grenze der Injektionsenergie auf Basis der Plasmafrequenz des  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalls gegeben.

Die so genannte Plasmafrequenz  $\omega_p$  des Target-Mediums, hier ein  $\text{Be}^+$ -Ionen-Kristall, mit Ladung  $Q_T$ , Masse  $M_T$  und Teilchendichte  $n_T$  ist durch

$$\omega_p = \sqrt{\frac{e^2 Q_T^2}{\epsilon_0 M_T} n_T} \quad (2.3)$$

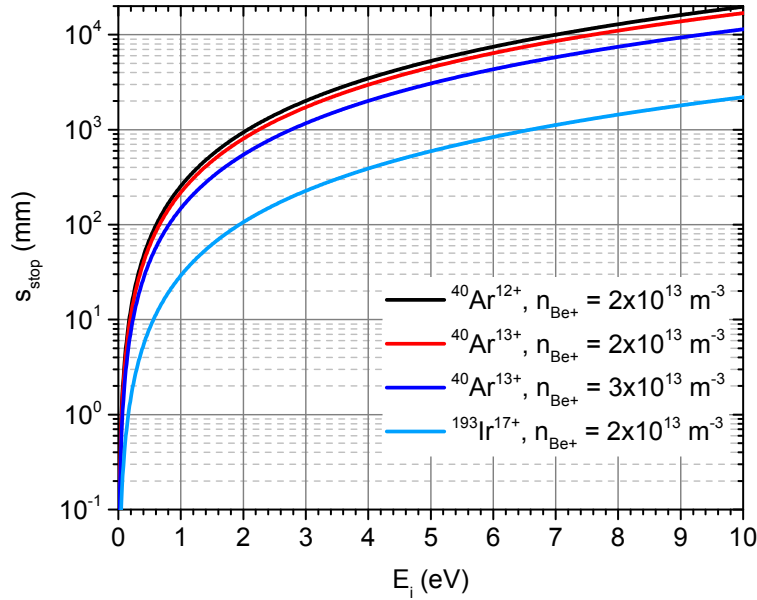
gegeben. Das inverse der Plasmafrequenz  $\omega_p^{-1}$  legt die Zeitskala der Reaktion des  $\text{Be}^+$ -Einkomponenten-Plasmas auf das HCI als einlaufendes Projektil fest. Dabei kann die  $\text{Be}^+$ -Teilchendichte nach  $n_T = \epsilon_0 M_T (\omega_x^2 + \omega_y^2 + \omega_z^2) / (e Q_T)^2$  aus den messbaren Fallenfrequenzen  $(\omega_x, \omega_y, \omega_z)$  bestimmt werden. Für den experimentellen Aufbau dieser Arbeit werden typischerweise  $\text{Be}^+$ -Teilchendichten von  $2 \times 10^{13} \text{ m}^{-3}$  erzeugt. Dies entspricht einer Plasma-Reaktionszeit von  $\tau_p = \omega_p^{-1} = 508 \text{ ns}$ . Ein Vergleich mit der möglichen Interaktionszeit  $t_i$  eines unabgebremst, mit mittlerer kinetischer Energie von  $680 \text{ eV}/Q$ , aus der EBIT kommenden,  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpaketes mit einem  $s_{\text{cryst}} = 2 \text{ mm}$  langen  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall obiger Dichte zeigt, dass die HCIs hier viel zu schnell wären, um durch kollektive Wechselwirkungs-Effekte mit dem Kühllionen-Plasma wesentlich an Energie zu verlieren. Da in [202], im Rahmen umfangreicher Molekulardynamik-Simulationen des Abbremsvorgangs langsamer HCIs ( $< 1 \text{ eV}$ ) in lasergekühlten  $\text{Mg}^+$ -Coulomb-Kristallen gezeigt wurde, dass typische Energieverluste aufgrund von binären Coulomb-Stößen zwischen hier HCI und  $\text{Mg}^+$ -Ion im Bereich von ein paar meV liegen, wäre eine Implantation bei hohen HCI-Injektionsenergien auch nicht durch binäre Stöße möglich. Nach  $t_i = s_{\text{cryst}}/v_{\text{HCI}}$  ergäbe sich, bei einfachem Durchgang durch den Kühllionen-Kristall, eine Interaktionszeit von ca. 10 ns. Aufgrund dieser einfachen Abschätzung kann bereits davon ausgegangen werden, dass die mittlere Geschwindigkeit der  $\text{Ar}^{13+}$ -Pakete ungefähr um den Faktor 50 reduziert werden muss, um tatsächlich eine effiziente Implantation der HCIs in den  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall zu gewährleisten. Dies entspricht einer

Injektionsenergie von  $0.3 \text{ eV}/Q$  (d.h.  $4 \text{ eV}$  für  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen).

Abgebremste, in die lineare Paulfalle injizierte HCIs verlieren einen Großteil ihrer verbleibenden geringen kinetischen Energie durch Coulomb-Stöße mit  $\text{Be}^+$ -Ionen, die bereits im Hauptteil der Falle gespeichert wurden. Die Vielzahl an Coulomb-Stößen mit den kontinuierlich lasergekühlten  $\text{Be}^+$ -Ionen entspricht einer effektiven, auf die einlaufenden HCIs wirkenden, Reibungskraft. Das Bremsvermögen  $-\frac{dE_{HCI}}{ds}$  eines Coulomb-Kristalls, bestehend aus Kühlionen, ist als Energieverlust des einlaufenden Projektil-HCIs pro zurück gelegter Wegstrecke  $s$  definiert und kann nach Bussmann et al. [202] durch folgende Gleichung berechnet werden:

$$-\frac{dE_{HCI}}{ds} = \left( \frac{e^2 Q_{HCI}^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{v_{HCI}^2} \right) \omega_p^2 \Lambda_C(E_{HCI}) . \quad (2.4)$$

Ansatzpunkt für die Herleitung von Gleichung (2.4) ist die Integration des Energieverlustes eines einzelnen Coulomb-Stoßes mit Stoßparameter  $b$  über alle möglichen Stoßparameter. Der erste Term, in Klammern, von Gleichung (2.4) enthält hierbei die Eigenschaften des Projektil-HCIs, wie dessen Ladung  $Q_{HCI}$  und Geschwindigkeit  $v_{HCI}$ . Der zweite Term basiert auf der Plasmafrequenz  $\omega_p$  des Target-Mediums. Der dritte Term aus Gleichung (2.4) ist der so genannte Coulomb-Logarithmus  $\Lambda_C = \int_{b_{min}}^{b_{max}} \frac{db}{b}$ , der üblicherweise nur schwach von der Energie des Projektil-HCIs



**Abbildung 2.2:** Benötigte Abbremslänge  $s_{\text{stop}}$  in einem kontinuierlich lasergekühlten  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall in Abhängigkeit der kinetischen Injektionsenergie  $E_i$  eines einzelnen HCIs. Gezeigt sind mehrere Kurven für Projektil-HCIs mit verschiedenem  $Q/M$ -Verhältnis sowie für verschiedene  $\text{Be}^+$ -Ionendichten  $n_{\text{Be}^+}$ .



abhängt, wie folgende Beziehung aus [202] zeigt:

$$\Lambda_C = \ln \left( \frac{\sqrt{128} \pi \epsilon_0 E_{HCI}^{3/2}}{e^2 Q_{HCI} Q_T \sqrt{M_{HCI} \omega_p}} \right). \quad (2.5)$$

Ein Ansatz zur Abschätzung der Abbremslänge in Abhängigkeit der Projektilenergie besteht darin, in Gleichung (2.4) die schwache Energieabhängigkeit des Coulomb-Logarithmus zu vernachlässigen und das Bremsvermögen des Kühllionen-Kristalls durch

$$-\frac{dE_{HCI}}{ds} = \frac{f}{E_{HCI}} \quad (2.6)$$

auszudrücken, wobei der Faktor  $f$  das Produkt aus Bremsvermögen und Projektilenergie bezeichnet und somit wie folgt beschrieben werden kann:

$$f = \frac{1}{8\pi\epsilon_0} e^2 Q_{HCI}^2 M_{HCI} \omega_p^2 \Lambda_C. \quad (2.7)$$

Die Integration von Gleichung (2.6) mit den entsprechenden Integrationsgrenzen nach  $-\int_{E_i}^0 E dE = f \int_0^{s_{\text{stop}}} ds$  ergibt direkt einen Ausdruck für die Abbremslänge  $s_{\text{stop}}$  in Abhängigkeit der anfänglichen kinetischen Injektionsenergie  $E_i$ :

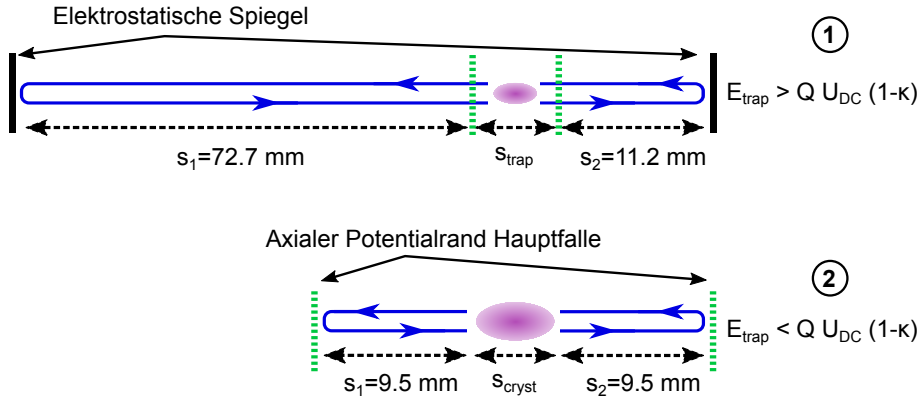
$$s_{\text{stop}} = \frac{E_i^2}{2f}. \quad (2.8)$$

Die Ableitung von Gleichung (2.8) beruht auf der Annahme, dass der Kühllionen-Kristall während des gesamten Abbremsvorgangs in der kristallinen oder flüssigen Phase bleibt und nicht in die gasförmige Phase, die durch eine gespeicherte Ionenwolke ohne scharfen Rand in den Fluoreszenzbildern charakterisiert ist, übergeht. Benötigte Abbremslängen in einem lasergekühlten  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall in Abhängigkeit der anfänglichen Injektionsenergie eines HCIs sind in Abbildung 2.2 für verschiedene Szenarien von Kühllionendichten und Projektil-HCIs gezeigt. Der Vergleich der einzelnen Kurven verdeutlicht die Abhängigkeiten des Bremsvermögens, nach Gleichungen (2.6) und (2.7), von Masse und Ladung des Projektil-HCIs, sowie von der Dichte der Kühllionen.

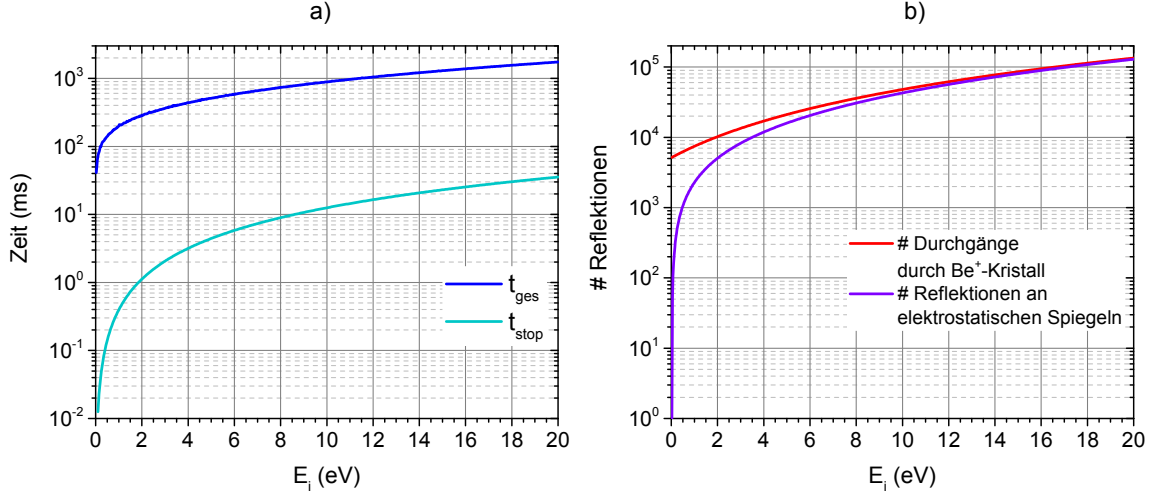
Für den hier experimentell typischerweise zu erwartenden Fall einer  $\text{Be}^+$ -Ionendichte von  $n_{\text{Be}^+} = 2 \times 10^{13} \text{ m}^{-3}$ , erhält man für den beispielhaften Fall des Abbremsens (bis zur Ko-Kristallisation) eines  $\text{Ar}^{13+}$ -Ions, mit einer anfänglichen Injektionsenergie von  $E_i = 1 \text{ eV}$ , eine Abbremslänge von  $s_{\text{stop}} = 220 \text{ mm}$  ( $\Lambda_C = 11.7$ ,  $f = 2.3 \text{ meV}^2 \mu\text{m}^{-1}$ ). Vergleicht man dieses Ergebnis zur Abbremslänge mit maximal vertretbaren Längen des  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalls von  $(1 - 2) \text{ mm}$ , so erkennt man, dass selbst für relativ niedrige Injektionsenergien  $\leq 1 \text{ eV}$  eine einzelne Durchquerung des Kühllionen-Kristalls nicht zum Stoppen der  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen ausreichen würde. Daher wurde eine Konzept, beruhend auf Mehrfach-Reflektionen der HCIs zwischen zwei, die Paul-falle umgebenden, elektrostatischen Spiegeln, entwickelt. Damit kann die effektive Länge des Kühllionen-Coulomb-Kristalls um ein Vielfaches verlängert werden. Der zusätzliche Vorteil eines Multi-Durchgangs-Konzeptes besteht hier darin, dass die

Injektionsenergie der Projektil-HCIs für ein größeres Energieintervall zur erfolgreichen Implantation und Ko-Kristallisation der HCIs führt.

Wie in [202, 203] gezeigt, kann man die, zur Abbremslänge gehörende Abbremszeit  $t_{stop}$ , die benötigt wird um ein, mit anfänglicher Injektionsenergie  $E_i$ , einlaufendes HCI im Kühllionen-Kristall zu stoppen, nach  $t_{stop} = \sqrt{2M_{HCI}E_i^3}/f$  berechnen. Für das Beispiel eines einzelnen, zu implantierenden  $\text{Ar}^{13+}$ -Ions mit Injektionsenergie  $E_i = 1 \text{ eV}$  und einer  $\text{Be}^+$ -Ionendichte von  $2 \times 10^{13} \text{ m}^{-3}$ , erhält man eine abgeschätzte Abbremszeit von  $400 \mu\text{s}$ . Hierbei wird davon ausgegangen, dass die Länge des Kühllionen-Coulomb-Kristalls ausreichend groß ist, um das HCI auf dieser Wegstrecke vollständig abbremsen zu können. Wie im Zusammenhang mit Abbildung 2.2 diskutiert, ist dies experimentell nicht unbedingt der Fall. Bei Anwendung eines Multi-Durchgangs-Konzeptes verlängert sich die bis zur Implantation benötigte Gesamtzeit  $t_{ges}$ , im Vergleich zu  $t_{stop}$ , je nach Abstand der beiden elektrostatischen Ionen-Spiegel und der für den axialen Einschluss des Kristalls in der Hauptfallenregion benötigten DC-Spannungsdifferenz  $U_{DC}$ , wie bei Betrachtung von Abbildung 2.3 klar wird, in der auch die experimentell gegebenen Abstände eingetragen sind.  $t_{stop}$  verlängert sich um die Zeiten, die das HCI, mit immer kleiner werdender Geschwindigkeit, braucht, um je die Strecken  $2 \times s_1$  und  $2 \times s_2$  zurückzulegen. Zusätzlich ist hier zu bedenken, dass sich die Energie, mit der die HCIs auf den  $\text{Be}^+$ -Kristall in der Hauptfalle treffen, aus ihrer anfänglichen Injektionsenergie  $E_i$  und der kinetischen Energie  $QU_{DC}(1 - \kappa)$  zusammen setzt, die sie gewinnen,



**Abbildung 2.3:** Skizze zum Multipass-Konzept des vollständigen Abbremsens von HCIs in Kühllionen-Coulomb-Kristallen. Die Skizze und Abmessungen werden zur näherungsweisen Bestimmung der, zur Implantation von HCIs im  $\text{Be}^+$ -Kristall, benötigten Gesamtzeit  $t_{ges}$  verwendet. Die Gesamtzeit entspricht dabei der Zeitdauer zwischen Injektion der HCIs in die Paulfalle bis zum vollständigen Abbremsen, dass durch Erreichen, für einen Coulomb-Kristall typischer, thermischer kinetischer Energien der HCIs definiert ist. HCIs kommen in der Skizze von links in die Paulfalle und verlieren bei jedem Durchgang durch den Kühllionen-Kristall einen Teil ihrer kinetischen Energie, bis sie ko-kristallisieren. Anfangs finden die Reflektionen zwischen den elektrostatischen Spiegeln, bei genügend hohem Energieverlust zwischen den axialen Potentialrändern der Hauptfalle, statt. Abmessungen bezogen auf das reale Experiment und eine Kühllionen-Kristalllänge von  $s_{cryst} = 1 \text{ mm}$ .



**Abbildung 2.4:** Berechnete Abschätzungen der Gesamt- bzw. Abbremszeit (a)), sowie der Anzahl der Be<sup>+</sup>-Kristall-Durchquerungen (b)) eines einzelnen Ar<sup>13+</sup>-Ions in Abhängigkeit seiner anfänglichen Injektionsenergie  $E_i$ . Für die Berechnungen wurde eine Be<sup>+</sup>-Ionendichte von  $2 \times 10^{13} \text{ m}^{-3}$  ( $f = 2.3 \text{ meV}^2 \mu\text{m}^{-1}$ ) für einen Kristall der Länge  $s_{\text{cryst}} = 1 \text{ mm}$  angenommen, sowie eine DC-Spannung von  $U_{DC} = 490 \text{ mV}$  für den axialen Einschluss der Ionen (siehe 1.9 aus Kapitel 1.1.2). Abbruchbedingung für die iterative Berechnung der HCI-Energie  $E_n$  im n-ten Durchlauf war:  $s_{\text{stop}}(E_n) \leq s_{\text{cryst}}$ .

wenn sie das axiale Potential der Hauptfalle herunter laufen. Ab einem gewissen Energieverlust pendeln die HCIs nur noch in dem axialen Potential der Hauptfalle durch den Be<sup>+</sup>-Kristall, bis sie ko-kristallisiert werden. Die Energien, und damit die Geschwindigkeiten, können iterativ berechnet werden. Für die Energie  $E_n$  des HCIs im n-ten Durchlauf, die zur Berechnung der zum Zurücklegen der Strecken  $s_1$  und  $s_2$  benötigten Zeit dient, werden zwei zeitlich aneinander anschließende Bereiche definiert. Basis zur iterativen Berechnung von  $E_n$  ist stets die Integration von Gleichung (2.6). Gilt für die kinetische Energie  $E_{\text{trap}}$  des HCIs im axialen Potentialminimum der Hauptfalle  $E_{\text{trap}} > QU_{DC}(1 - \kappa)$  (was anfangs immer der Fall ist), so wird der

Ausdruck  $E_n = \sqrt{(E_{n-1} + QU_{DC}(1 - \kappa))^2 - 2fs_{\text{cryst}} - QU_{DC}(1 - \kappa)}$  angewandt. Führt das HCI für  $E_{\text{trap}} < QU_{DC}(1 - \kappa)$  nur noch eine oszillatorische Bewegung in der Hauptfalle aus, so wird die Gleichung  $E_n = \sqrt{E_{n-1}^2 - 2fs_{\text{cryst}}}$  angewandt. Die Abbruchbedingung der Iterationen ist dabei durch  $s_{\text{stop}}(E_f) \leq s_{\text{cryst}}$  gegeben, d.h. wenn die zu der Energie  $E_f$  gehörende Abbremslänge kleiner als die Länge des Kühlionen-Kristalls ist. Die Abbremszeit im zweiten Bereich ② ist für eine gegebene Spannungsdifferenz  $U_{DC}$  konstant und unabhängig von der Injektionsenergie  $E_i$ . Für  $U_{DC} = 490 \text{ mV}$  wäre sie in diesem Experiment ca. 27 ms.

Die Ergebnisse einer beispielhaften Rechnung sind, für die Implantation eines einzelnen Ar<sup>13+</sup>-Ions in einem Coulomb-Kristall mit einer Be<sup>+</sup>-Ionendichte von  $2 \times 10^{13} \text{ m}^{-3}$  und einer DC-Spannung von  $U_{DC} = 490 \text{ mV}$  für den axialen Einschluss der Ionen (siehe 1.9 aus Kapitel 1.1.2), in Abbildung 2.4 a) und b), zu sehen. Man erkennt an a), dass für obiges Beispiel eines einzelnen, zu implantierenden

Ar<sup>13+</sup>-Ions mit der Injektionsenergie  $E_i = 1 \text{ eV}$  und einer Be<sup>+</sup>-Ionendichte von  $2 \times 10^{13} \text{ m}^{-3}$ ,  $t_{ges}$  mit 200 ms rund 500 mal höher ist als die reine, innerhalb des Kühlionen-Kristalls, benötigte Abbremszeit. Die gesamte benötigte Zeit, kann zum einen durch Verringerung des Abstandes zwischen den elektrostatischen Spiegeln verkleinert werden, der allerdings für die Experimente dieser Arbeit durch die Werte aus Abb. 2.3 gegeben ist. Zum anderen kann die Gesamtzeit durch  $U_{DC}$  beeinflusst werden. Hier besteht jedoch nur eine geringe Variationsbreite, da stets ein ausreichend starker axialer Einschluss der Coulomb-Kristalle gewährleistet sein muss. Abbildung 2.4 a) dient der Verdeutlichung des Unterschieds zwischen der reinen Abbremszeit  $t_{stop}$  und der gesamten, für den Implantationsprozess notwendigen, Zeit  $t_{ges}$ . Die, für die Berechnung gemachte, vereinfachende Annahme eines kastenförmigen statt harmonischen Potentials in der Falle ändert dabei weder etwas an der prinzipiellen Aussage noch an der Größenordnung des dargestellten Unterschiedes zwischen den beiden Zeiten.

Die, in Abb. 2.4 b) gezeigte, Abhängigkeit der Anzahl, bis zur Implantation stattfindenden Durchquerungen des Be<sup>+</sup>-Coulomb-Kristalls, von der anfänglichen HCI Injektionsenergie verdeutlicht, dass  $E_i$  möglichst nicht höher als ein paar eV sein sollte. Ansonsten steigt die Wahrscheinlichkeit im realen Experiment, dass das HCI bei der hohen Anzahl an Reflektionen in der Paulfalle durch elektronische Instabilitäten oder durch die Wechselwirkungen mit den Be<sup>+</sup>-Ionen auf eine instabile Teilchenbahn gezwungen wird und verloren geht.

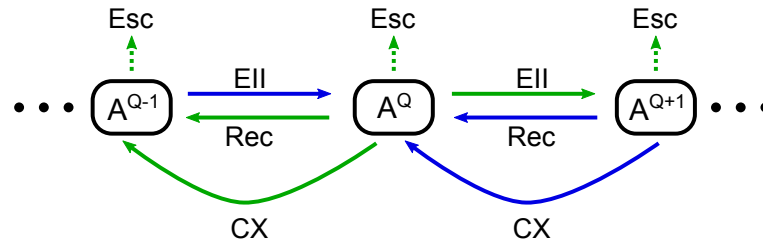
Die experimentelle Beobachtung der maximalen Zeit zwischen Beginn eines Injektions-Zyklus und erfolgreicher HCI-Implantation, lässt mittels der Resultate aus Abb. a) 2.4 dann Rückschlüsse auf die anfängliche Injektionsenergie der HCIs zu. In diesem Zusammenhang sei darauf hingewiesen, dass die auf der linearen Antworttheorie beruhende Gleichung (2.7), Werte liefert, die im Vergleich mit den Molekuldynamik-Simulationen aus [202] um einen Faktor 2 – 3 zu groß sein können.

## 2.2 Produktion und Extraktion hochgeladener Ionen

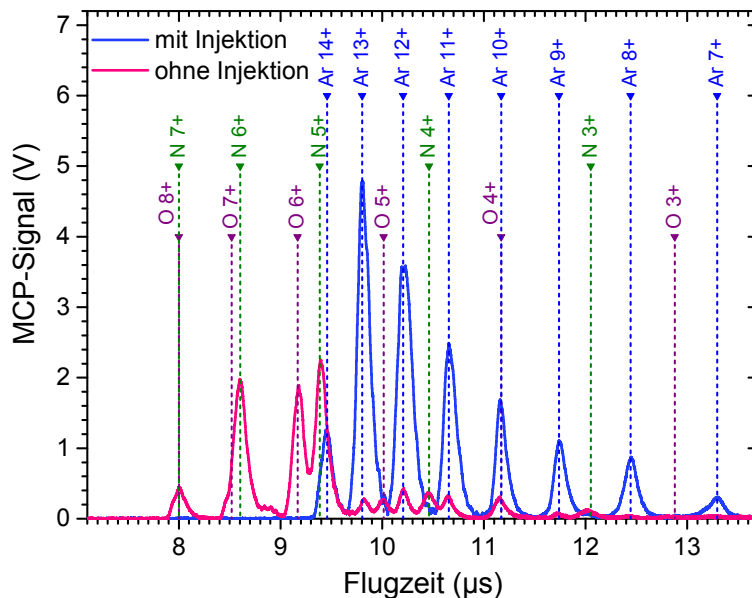
Bei kontinuierlicher Injektion von Ar-Neutralgas als Atomstrahl in die Fallenregion einer EBIT, entstehen durch Elektronenstoßionisation (EII) sequentiell immer höhere Ladungszustände von Argon-Ionen. Dieser Prozess kann sich so lange fortsetzen, bis die Elektronenstrahlenergie unterhalb des Ionisationspotentials, des bis dahin am höchsten geladenen Argonions, liegt. Die Elektronenstrahlenergie ist dabei festgelegt durch die Beschleunigungsspannung zwischen Elektronenkanone und Fallenelektroden, sowie der negativen Raumladung des Elektronenstrahls in der Fallenregion und der teilweisen Kompensation selbiger durch die produzierte Ionenwolke. Neben EII, gehören Rekombinations- und Ladungsaustausch-Prozesse (Rec und CX) im dünnen EBIT-Plasma zu den Reaktionen zwischen Ionen und dem  $e^-$ -Strahl bzw. neutralen Restgas-Teilchen, die den Ladungszustand der Ionen verändern können. Dies führt zu dem bekannten System gekoppelter Ratengleichungen, welche die Populationsdynamik der Dichten  $n_q$  von Ionen in einem bestimmten Ladungszustand  $Q$  nach Penetrante et al. [204] wie folgt bestimmen:

$$\begin{aligned} \frac{dn_Q}{dt} = & n_{Q-1} R_{Q-1 \rightarrow Q}^{EII} + n_{Q+1} (R_{Q+1 \rightarrow Q}^{Rec} + R_{Q+1 \rightarrow Q}^{CX}) \\ & - n_Q (R_{Q \rightarrow Q+1}^{EII} + R_{Q \rightarrow Q-1}^{Rec} + R_{Q \rightarrow Q-1}^{CX} + R_Q^{Esc}) + R_Q^{source}. \end{aligned} \quad (2.9)$$

Im Unterschied zur Originalveröffentlichung wurden hier, außer für den Quellterm  $R_Q^{source}$  die, auf ein einzelnes Ion bezogenen, normierten effektiven Raten angegeben. Der Term mit  $R_Q^{Esc}$  beschreibt das thermisch bedingte radiale und axiale Entweichen von Ionen, mit Ladungszustand  $Q$ , aus der Falle. Da die Raten von Entweichen und Ladungsaustausch von der Temperatur des Ionenensembles mit Ladungszustand  $Q$  abhängt, muss parallel zu dem Differentialgleichungssystem (2.9), eines für die Temperaturdynamik der einzelnen Ionenwolken in der EBIT-Falle gelöst werden. Die Temperatur der Ionenwolke wird durch Aufheizeffekte, bedingt durch Coulomb-Stöße mit den Elektronen des  $e^-$ -Strahls, durch Energieaustausch zwischen den Ionenwolken verschiedener Ladungszustände, durch Ion-Ion-Stöße sowie durch Verdampfungskühlen [205] aufgrund des Entweichens von heißeren Ionen des En-



**Abbildung 2.5:** Gekoppelte Populationsdynamik für die Dichten an erzeugten Ionen verschiedener Ladungszustände. Die Kopplung erfolgt durch das Vorhandensein mehrerer, teils gegenläufiger Prozesse: EII - Elektronenstoßionisation, Rec - resonante und nicht-resonante Rekombinations-Prozesse, CX - Ladungsaustausch mit neutralem Restgas, ESC - thermisch bedingtes, axiales oder radiales Entweichen aus der EBIT-Falle (äquivalent zu einem kontinuierlichen Extraktionsprozess).



**Abbildung 2.6:** Identifikation von Ionen mit unterschiedlichen  $Q/M$ -Verhältnissen für beispielhafte, aus der EBIT extrahierte, Ionenpakete. Blaue Kurve: Flugzeitspektrum extrahierter Ionenpulse mit kontinuierlicher Ar-Injektion in die EBIT-Falle, im Zeitraum vor der Extraktion. Magenta Kurve: Flugzeitspektrum extrahierter Ionenpakete ohne vorherige Ar-Injektion (Ventil zum Gasinjektor geschlossen). EBIT-Einstellungen für die HCl-Produktion: Strom des  $e^-$ -Strahls von 14 mA, Beschleunigungsspannung für den  $e^-$ -Strahl von 900 V, invertierte Falle. Flugzeitspektren je mit (BD1) aufgenommen.

sembles aus der Falle, beeinflusst.

Aus Gleichungssystem (2.9) folgt, dass sich, bei kontinuierlicher Injektion von neutralem Argon, in der Regel nur ein Bruchteil der erzeugten Argonionen in einem bestimmten Ladungszustand befindet (siehe hierzu auch Abb. 2.5). Bei gleichzeitiger, gepulster Extraktion aller produzierter Ionen, z.B. durch Anlegen eines kurzen hohen positiven Spannungspulses an die zentrale EBIT-Fallenelektrode, wird das gesamte Ionenensemble bereits auf dem Weg zum Detektor (BD1), durch die verschieden langen Flugzeiten, nach den einzelnen  $Q/M$ -Verhältnissen separiert. Dadurch ermöglicht die Extraktion des produzierten Ensembles hochgeladener Ionen die zeitlich aufgelöste Beobachtung der Ladungszustandsverteilung in der EBIT. Die zeitliche Auflösung erfolgt durch die Extraktion nach verschiedenen langen Brutzeiten, definiert als die Zeit zwischen Schließung und Öffnung der axialen EBIT-Falle.

Nach erfolgter  $Q/M$ -Identifikation aller Flugzeitpeaks, kann somit die Höhe des Flugzeitpeaks mit gewünschtem  $Q/M$ -Verhältnis, z.B. das für  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, als Maß für die Anzahl an HCl's in diesem Puls, durch geeignete Einstellung der relevanten EBIT- und Beamline-Parameter optimiert werden, während alle anderen Flugzeitpeaks unterdrückt werden können. Die, dieser Promotionsforschung vorangegangene, Diplomarbeit [206] beschäftigt sich detailliert mit Populationsdynamik der einzelnen Ladungszuständen in der EBIT (Seiten 12-21 und 52-56), sowie mit

dem Extraktionsmechanismus und der Beobachtung und Optimierung der extrahierten Ladungszustandsverteilungen (Seiten 115-127). Für vertiefte Informationen zu Ionenproduktion- und Extraktion, auf Basis von EBITs, sei daher auf [206] und die darin enthaltenen Referenzen verwiesen.

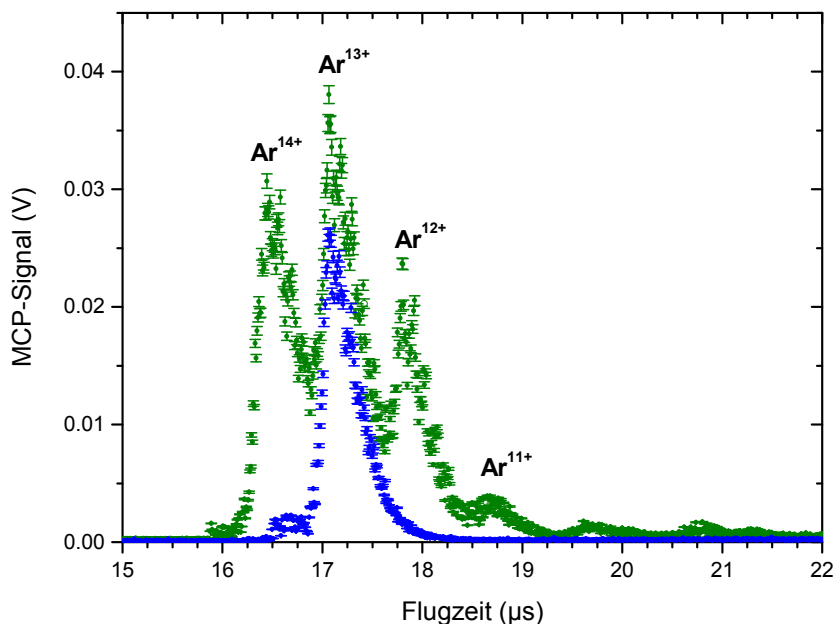
Die Identifikation aller, in den extrahierten Ionenpaketen enthaltener, Ionen stellt die Voraussetzung für die Optimierung der EBIT-Parameter (z.B. Elektronenstrahlenergie und -strom, Brutzeit, axiale Falltiefe, Injektionsdruck) bzgl. der Anzahl produzierter HCIs mit gewünschtem  $Q/M$ -Verhältnis, sowie der aktiven  $Q/M$ -Selektion der HCI-Pakete, dar. Die verwendeten Methoden zur  $Q/M$ -Identifikation werden im Folgenden zusammengefasst.

Werden die HCI-Pakete nicht abgebremst, so befinden sich zwischen EBIT und Ionendetektor (BD1) nur elektrostatische Ionenoptiken. Damit kann die  $Q/M$ -Identifikation nur über eine Flugzeit-Methode erfolgen, bei der die gesamte Beamline Teil der 2 m langen Wegstrecke zwischen der zentralen EBIT-Fallenelektrode und (BD1) ist. Flugzeitspektren des, im gepulsten Modus, extrahierten Ionenensembles werden mit Hilfe eines Oszilloskops aufgenommen, das durch das TTL-Signal getriggert wird, welches auch die Extraktion aus der EBIT bewirkt (siehe auch Abbildung 2.15 ohne Abbremsen). Der Nullpunkt der Flugzeitspektren ist somit durch den Zeitpunkt festgelegt, an dem alle produzierten HCIs zeitgleich die EBIT-Falle axial, mit mittleren kinetischen Energien von  $Qe\bar{V}_{extr}$ , in Richtung des hohlzylinderförmig aufgebauten Kollektors, verlassen. Anschließend werden sie, entlang der Wegstrecke zum Detektor, aufgrund der unterschiedlichen Flugzeiten nach ihren  $Q/M$ -Verhältnissen separiert. Ein typisches mit (BD1) gemessenes Flugzeitspektrum, bei Produktion von hochgeladenen Argonionen, gemittelt über 64-Extraktionszyklen, ist in Abbildung 2.6 (blaue Kurve) zu sehen.

Prinzipiell kann das  $Q/M$ -Verhältnis der zeitlich aufgelösten Flugzeitpeaks nach

$$\frac{Q}{M} \left[ \frac{e}{u} \right] \approx 1.04 \times 10^4 \frac{(z [\text{m}])^2}{2\bar{V}_{extr} [\text{V}] (\bar{t}_{Q/M} [\mu\text{s}])^2} \quad (2.10)$$

bestimmt werden. Dabei steht  $\bar{t}_{Q/M}$  für die mittlere Flugzeit (Peak-Position) eines HCI-Pulses, bestehend aus Ionen eines spezifischen  $Q/M$ -Verhältnisses und  $z$  ist die Wegstrecke zwischen zentraler EBIT-Fallenelektrode und dem Ionendetektor. Die Herleitung von Gleichung (2.10) beruht dabei auf der Energieerhaltung für die Bewegung eines geladenen Teilchens in elektrostatischen Feldern bei gleichzeitiger Annahme einer geradlinig gleichförmigen Ionenbewegung durch die Ionenoptiken. Alle, auf der rechten Seite von Gleichung (2.10) enthaltenen Größen können experimentell bestimmt werden. Allerdings ist die Annahme einer geradlinig gleichförmigen Ionenbewegung entlang von  $z$  nicht korrekt und die gemessenen Flugzeiten müssen mittels Simulationen korrigiert werden, damit Gleichung (2.10) anwendbar bleibt. Der Grund hierfür liegt darin, dass die Ionen mehrere, lange elektrostatische Ionenoptiken durchfliegen. Dabei ändert sich die Gesamt-Energie der Teilchen, aufgrund der Energieerhaltung, nicht, wohl aber ihre Gesamt-Flugzeit, da sich die HCIs innerhalb der Ionenoptiken, bei negativ (positiv) angelegten Spannungen, schneller (langsamer) bewegen im Vergleich zu einer geradlinig gleichförmigen Wegstrecke.



**Abbildung 2.7:** Mit dem Ionendetektor (BD2) hinter der Paulfalle aufgenommene Flugzeitspektren extrahierter Ionenpakete. Der Startzeitpunkt entspricht dem Extraktionszeitpunkt der HCIs aus der EBIT. Grüne Datenpunkte: Flugzeitspektrum ohne Ladungszustands-Selektion, eingestellte Beschleunigungsspannung für den  $e^-$ -Strahl von 997 V. Blaue Datenpunkte: Flugzeitspektrum mit aktiver Ladungszustands-Selektion, d.h. unter Verwendung der Kicker-Elektrode von (D1) zum Exkludieren von Ladungszuständen unterhalb von 13 und einer Beschleunigungsspannung für den  $e^-$ -Strahl von 777 V zur Unterdrückung höherer Ladungszustände als 13. Die Flugzeitspektren wurden ohne Kompensation des EBIT-Restmagnetfeldes aufgenommen.

Des Weiteren kann berechnet werden [206], dass diese Veränderung der Flugzeiten eine  $Q/M$ -Abhängigkeit mit  $\bar{t}_{Q/M} \propto (Q/M)^{-1/2}$  zeigt. Gleichung (2.10) wird, zusammen mit SIMION-Simulationen zur Korrektur des ionenoptischen Flugzeit-Effektes für die gegebene Beamline, zur ersten  $Q/M$ -Identifikation verwendet.

Die Flugzeit  $Q/M$ -Identifikations-Methode wird zur eindeutigen Identifikation mit weiteren Methoden kombiniert. Eine besteht in dem Vergleich zweier Flugzeit-Spektren, die bei gleichen EBIT- und Beamline-Einstellungen aufgenommen werden, bis auf den Unterschied, dass einmal das Ventil zum Gasinjektor der EBIT geöffnet und einmal geschlossen ist. Zwei solcher Spektren werden beispielhaft in Abbildung 2.6 verglichen. Ist das Ventil offen (blaues TOF-Spektrum) wird kontinuierlich Ar-Neutralgas in die EBIT-Fallenregion injiziert und es werden folglich hauptsächlich Argonionen verschiedener Ladungszustände extrahiert und detektiert. Ist das Ventil geschlossen (magenta TOF-Spektrum), wird das Flugzeitspektrum von HCI-Peaks dominiert, die verschiedenen Ladungszuständen von Restgas-Ionen (z.B. HCIs von N, O, C), die stets im EBIT-Vakuum vorhanden sind, zugeordnet werden können. Wird neutrales Argon injiziert, so verdrängen dessen Ionen die leichteren Restgasionen aus der Falle und es ist gerade bei seichter axialer Falle möglich, die Entstehung und Extraktion von Restgasionen zu unterbinden, so dass nur Argonionen-Pakete



im Flugzeit-Spektrum vorkommen. Eine andere Methode besteht in dem Beobachten des Auftretens neuer Flugzeit-Peaks bei schrittweiser Erhöhung der, fast mono-energetischen, Elektronenstrahl-Energie und Vergleich mit den bekannten Ionisationspotentialen der relevanten Elemente. Die mit diesen Methoden erhaltene  $Q/M$ -Identifikation konnte zusätzlich durch die Beobachtung Ladungszustands-abhängiger dielektronischer Rekombinationen [207] in Argon bestätigt werden.

Nach erfolgreicher  $Q/M$ -Identifikation der Flugzeit-Peaks kann der gewünschte Flugzeit-Peak, z.B. der zu  $\text{Ar}^{13+}$  gehörende, selektiert werden, indem die übrigen Argon-Ladungszustände unterdrückt werden. Höhere Ladungszustände von Argon können durch Setzen der Elektronenstrahlenergie auf einen Wert unterhalb des Ionisationspotentials von  $\text{Ar}^{12+}$  unterdrückt werden. Niedrigere Ladungszustände werden in der Beamline vor dem Quadrupol-Bender durch die so genannte Kicker-Elektrode (D1) (in Abb. 2.1) aussortiert, indem diese direkt nach Durchflug des  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpaketes auf einen positiven, langanhaltenden Spannungswert gepulst wird, der die nachfolgenden Argonionen-Pakete niedrigerer Ladungszustände auf eine Bahn bringt, auf der sie nicht mehr durch die 12 mm breite Öffnung des Bender-Gehäuses kommen. Ein beispielhaftes Ergebnis solch einer aktiven Ladungszustands-Selektion, aufgenommen mit dem Detektor (BD2), wird in Abbildung 2.7 gezeigt.

## 2.3 Abbremsen extrahierter Ionenpakete und Vorkühlen

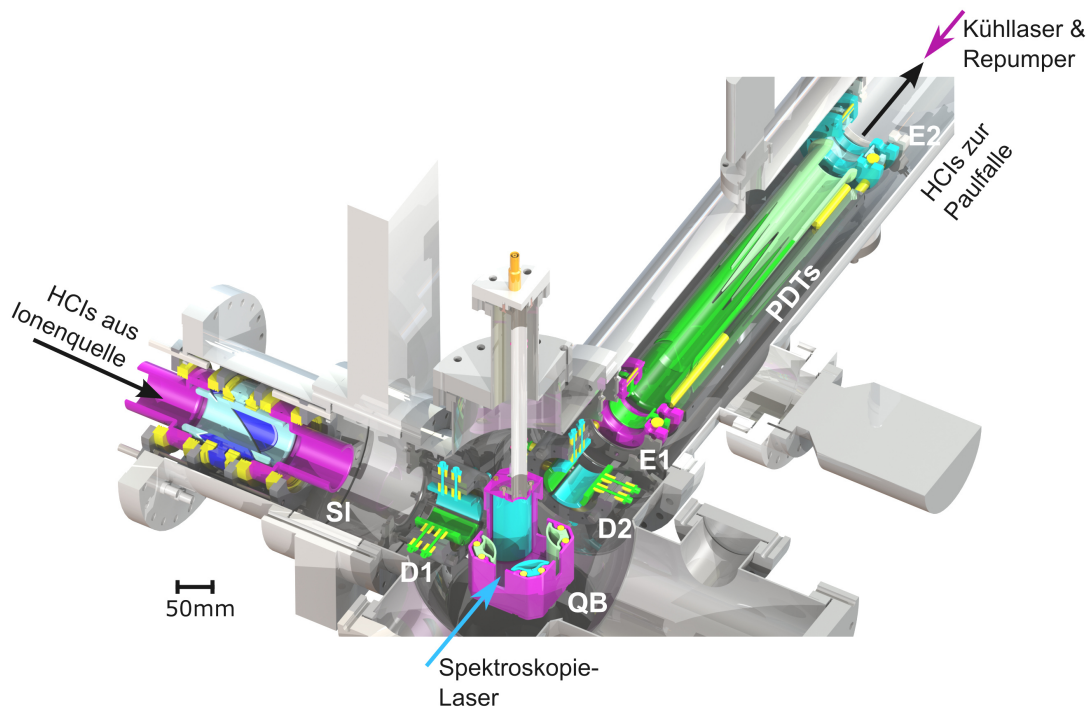
### 2.3.1 Beamline Komponenten

Ein CAD-Schnittbild der Beamline-Komponenten, die für das Abbremsen und Vorkühlen der HCI-Pakete relevant sind (vergleiche Abb. 2.1), ist in Abbildung 2.8 gezeigt. Mit Gesamtabmessungen von  $0.7\text{ m} \times 1\text{ m}$  der beiden 160 CF (conflat) Vakuumkammern ist sie für Arbeiten mit HCIs vergleichsweise kompakt gehalten und konnte später im radialen Querschnitt für Nachfolge-Experimente auf 100 CF verkleinert werden. Der Druck innerhalb der Vakuumkammern wird bei typisch  $5 \times 10^{-10}$  mbar gehalten, um Ladungsaustauschprozesse der HCIs mit neutralem Restgas zu verhindern. Das Ultrahochvakuum wird durch zwei  $300\text{ l s}^{-1}$  Turbomolekularpumpen, gefolgt von einer  $80\text{ l s}^{-1}$  Turbomolekularpumpe, die wiederum von einer Scroll-Pumpe unterstützt wird, erzeugt. Alle Elektroden (bis auf die Quadrupol-Bender Elektroden, die aus Titan gefertigt wurden) sind aus Edelstahl hergestellt und wurden anschließend elektropoliert, um eine ausreichend präzise elektrische Felddefinition zu ermöglichen und zusätzlich die erreichbaren Vakuumbedingungen zu verbessern.

Die mechanischen und elektrischen Anforderungen, sowie das entsprechende Design der einzelnen ionenoptischen Komponenten wurde bereits in der, dieser Arbeit vorausgehenden Diplomarbeit [206], im Detail beschrieben. Daher soll hier nur ein kurzer Überblick über die Funktionalität und Einsatzweise der Beamline-Komponenten gegeben werden. Die Beschreibung orientiert sich hierbei, wie in den gesamten Kapiteln 2.1 - 2.4 eng an der, während dieser Promotionsforschung, erstellten Veröffentlichung [200].

Folgt man dem Weg der extrahierten HCI-Pakete, ausgehend von ihrem Entstehungsort innerhalb der EBIT, so treffen selbige nach Verlassen des Kollektorbereichs der EBIT, als erstes auf eine 232 mm lange Sikler-Linse ((SI) in Abb.2.1) [208]. Sie kann zum zweidimensionalen transversalen Ablenken und gleichzeitig zur Fokussierung der HCI-Pakete verwendet werden. Diese räumlichen Manipulationen der HCI-Pulse erfolgen im Vergleich zu herkömmlichen Kombinationen aus Einzel-Linsen und Ablenkern mit möglichst geringen Aberrationen. Bei einer Sikler-Linse handelt es sich um eine, aus drei koaxial aufeinanderfolgenden Hohlzylindern bestehende, Einzellinse, deren zentrale Elektrode zweimalig diagonal in insgesamt vier Segmente zerteilt wird, um die Ablenkfunktionalität zu erhalten. An die Sikler-Linse schließen sich vier Ablenk-Elektroden an ((D1) in Abb.2.1), welche mechanisch durch zwei, zueinander orthogonale, Schnitte entlang der Symmetrieachse eines Hohlzylinders entstehen. Dieses Design stellt somit den Vorläufer einer Sikler-Linse dar, wobei die beiden äußeren, geerdeten Elektroden hier durch das geerdete Gehäuse des Quadrupol-Benders, sowie den geerdeten Haltering von (D1) gebildet werden. Die mit diesem Design einhergehende Platzersparnis wiegt verstärkte Aberrationen insofern auf, als dass der 40 mm Innendurchmesser von (D1) dazu beiträgt, dass selbige eine untergeordnete Rolle spielen. Die, in Abb. 2.1 zu sehende, blaue Elektrode von (D1) wird als Kicker-Elektrode für die Ladungszustandsselektion der extrahierten HCI-Pakete verwendet, wie in Kapitel 2.2 beschrieben.

Die 90°-Umlenkung der HCI-Pulse in Richtung der kryogenen Paulfalle erfolgt durch das Anlegen geeigneter Spannungen an die Elektroden eines elektrostatischen Quadrupol-Ablenkens [209]. Zwei diagonal gegenüberliegende Elektroden werden dabei auf eine positive Spannung gelegt, während die übrigen beiden Elektroden eine negative Spannung erhalten. Insgesamt sind die Elektroden, innerhalb des geerdeten Gehäuses des Ablenkens, in Quadrupol-Konfiguration angeordnet. Die rechteckigen Eintritts- und Austritts-Aperturen des Gehäuses sind 12 mm  $\times$  52 mm groß. Die Wahl eines elektrostatischen Quadrupol-Deflektors ermöglicht, im Gegensatz zu einem zylindrischen Ablenker, das problemlose Schalten zwischen bis zu drei möglichen Ionenquellen. Im vorliegenden Fall wird nur eine Ionenquelle für die Injektion in die Paulfalle verwendet. In diesem Fall ergibt sich als weiterer Vorteil eines Quadrupol-Benders der zusätzliche ionen- und licht-optische Zugang zu Ionenquelle und Paulfalle (siehe Abb. 2.1), ohne Verzerrungen des elektrischen Ablenkfeldes in



**Abbildung 2.8:** CAD-Schnittbild der Beamline-Komponenten, die für das Abbremsen und Vorkühlen der HCI-Pakete relevant sind (vergleiche Abb. 2.1). Ionenoptische Komponenten: (SI) Sikler-Linse, (D1) Ablenk-Elektroden (die sichtbare, blaue Elektrode wird als Kicker-Elektrode für die Ladungszustandsselektion verwendet), (QB) Quadrupol-Ablenker, (D2) Ablenk-Elektroden, (E1) und (E2) Einzellinsen, (PDTs) zwei gezackte gepulste Driftröhren für das Abbremsen und Vorkühlen der HCI Pakete. Farbcodierung der angelegten Spannungen: Magenta - Erdpotential, Blau - negative Spannungen, Grün - positive Spannungen. Die Magnetfeldspulen, angeordnet um die (PDTs), zur Kompensation des EBIT-Restmagnetfeldes sind der Übersichtlichkeit wegen nicht zu sehen. Teilweise entnommen aus der, während dieser Promotionsforschung, erstellten Veröffentlichung [200].

Kauf nehmen zu müssen, wie es der Fall bei Verwendung eines zylindrischen Ablenkens wäre. Werden keine Spannungen an die Ablenker-Elektroden angelegt, so können z.B. die extrahierten HCIs auch geradlinig aus der EBIT auf einen Ionendetektor geleitet werden, der direkt hinter (QB) installiert ist.

Der, durch den elektrostatischen Quadrupol-Ablenker, in die HCI-Pulse eingebrachte Astigmatismus kann mit Hilfe der Elektroden von (D2) korrigiert werden. Die Elektrodengeometrien von (D2) und (D1) sind identisch. Die verschiedenen Anwendungen werden durch Anlegen unterschiedlicher Spannungskombinationen ermöglicht. Für die Astigmatismus-Korrektur werden bei (D2) an je zwei gegenüberliegende Elektroden die gleichen Spannungen  $V$  bzw.  $-V$  angelegt, die sich zwischen den beiden Elektrodenpaaren nur vom Vorzeichen her unterscheiden.

Die beiden 39 mm langen Einzellinsen (E1) und (E2) gleichen lokal die Divergenz im HCI-Strahl aus. (E1) fokussiert die HCI-Pulse leicht ins Zentrum der gepulsten Driftröhren, während (E2) die abgebremsten HCI-Pakete transversal nahezu kollimiert in Richtung anschließender Führungselektroden innerhalb der Paulfallen-Vakuumkammer schickt.

Berechnungen von Raumladungseffekten auf die transversalen Ausdehnungen der extrahierten  $\text{Ar}^{13+}$  Pakete ergeben die Notwendigkeit der Strahlformung, selbst für den Fall eines anfangs divergenzf freien Strahls [206]. Ein Puls bestehend aus  $5 \times 10^4$   $\text{Ar}^{13+}$  Ionen hätte, bei anfänglichem Durchmesser von 4 mm, am Ende des in Abb. 2.1 gezeigten Beamline-Abschnitts einen Strahldurchmesser von 45 mm. Dieser Wert ist im Vergleich zum typischen Innendurchmesser 40 mm der zylindersymmetrischen Elektroden zu sehen.

Das entscheidende Element der Beamline sind die beiden gezackten, ineinander geschobenen Elektroden (PDTs), die nach dem Prinzip der gepulsten Driftröhre [210,211], hinsichtlich des elektrodynamischen Abbremsvorgangs der HCI-Pakete, arbeiten. Ihre Funktionsweise wird in den folgenden Kapiteln näher betrachtet.

Nach (E2) befindet sich ein herausziehbarer Ionendetektor ((BD1) in Abb. 2.1) in Kombination mit einem Gegenfeld-Analysator (engl. Retarding Field Analyzer). Der Ionendetektor besteht aus zwei Mikrokanalplatten (engl. Microchannel Plate, kurz MCP [212]) in Chevron-Konfiguration, an die sich direkt ein metallisch beschichteter Phosphorschirm anschließt (proximity focusing der Ionenpakete). Es handelt sich somit um einen orts aufgelösten Ionendetektor mit dem zum einen die transversale Form und Ausdehnung der Ionenpakete bestimmt werden kann. Zum anderen kann der leitende Phosphorschirm auch als Anode zum Auslesen des elektronischen Signals der Sekundärelektronen verwendet werden. Für die relevanten Messungen dieser Arbeit wurde die elektronische Ausleseform des Ionendetektors verwendet. Der Gegenfeld-Analysator setzt sich aus zwei dünnen Kupfergittern mit je einer Ionen-Transmissionseffizienz von ca. 80 % zusammen, die unmittelbar vor dem MCP angebracht sind. Das, aus Sicht der ankommenden Ionen, erste Cu-Gitter liegt dabei auf Erdpotential, während an das zweite Gitter eine variable positive Abbrems-Spannung  $V_G$  angelegt werden kann. Zur Bestimmung der longitudinalen kinetischen Energie der HCI-Pulse wird die, ein abbremsendes Gegenfeld erzeugende, Spannung  $V_G$  schrittweise erhöht und bei jedem Schritt die Anzahl der mit dem MCP detek-

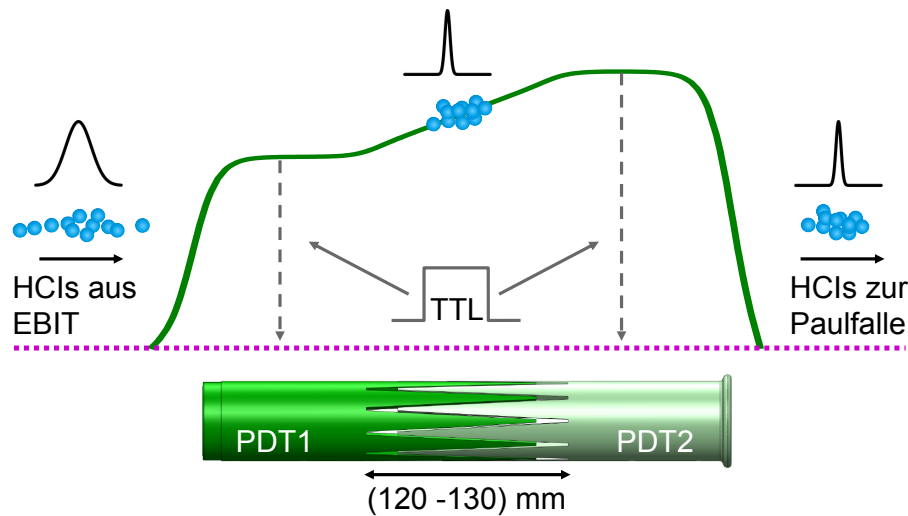
tierten Ionen  $N_{HCI}$  bestimmt, bis keine Ionen, aus Mangel an ausreichend hohen kinetischen Energien, mehr den Detektor erreichen können. Anschließend wird an den sigmoidalen Verlauf der Anzahl detektierter Ionen eine Boltzmann-Kurve angepasst. Deren erste Ableitung (mit negativem Vorzeichen versehen) liefert direkt die kinetische Energieverteilung der extrahierten HCI Pakete. Diese Aussage ist für den anzunehmenden Fall eines idealen Gegenfeld-Analysators wahr, da die, hinter dem Abbremsgitter detektierte Anzahl an Ionen mit Ladung  $Qe$  der Faltung der wahren kinetischen Energieverteilung  $B(E_{kin})$  des Ionenpaketes mit der Heaviside Funktion  $\Theta(E_{kin} - QeV_G)$  entspricht. Da HCI-Pakete der verschiedenen Ladungszustände den Ionendetektor zeitlich nacheinander erreichen, kann durch Aufnahme eines Energie- und Zeit-Aufgelösten Spektrums der Ionenanzahl  $N_{HCI}(V_G, TOF)$  die Energieverteilung für alle Ladungszustände extrahierter HCI-Pakete gleichzeitig bestimmt werden. Bei typischen mittleren longitudinalen kinetischen Energien von  $\bar{V}_{extr} = 680 \text{ eV}/Q$  wird für die aus Hyper-EBIT extrahierten  $\text{Ar}^{4+}$  -  $\text{Ar}^{14+}$  Ionen-Pakete eine Gaußsche Verteilung der kinetischen Energien mit einem FWHM von  $25 \text{ eV}/Q$  gemessen.

Ein zweiter, aus dem Ionen- und Laserweg herausziehbarer, Ionendetektor ((BD2) in Abb. 2.1) befindet sich, aus Sicht der extrahierten Ionen, hinter der kryogenen Paulfalle. Auch (BD2) basiert auf zwei MCPs in Chevron-Konfiguration, zusammen mit einer Metallanode, an der das elektronische Signal der ankommenden HCI-Pulse kapazitiv ausgekoppelt wird. Die Frontplatte des Ionendetektors wird mit einer Spannung von  $-2.2 \text{ kV}$ , die hintere MCP-Platte mit  $-200 \text{ V}$  beaufschlagt, während die Anode auf Erdpotential liegt. Ähnliche Spannungen werden für die MCP-Konfiguration von (BD1) gewählt. Für eine ausführliche Analyse, wie aus den zeitaufgelösten MCP-Signalen die Anzahl der Ionen pro HCI-Puls bestimmt werden kann, sowie zu den Detektionseffizienzen der Ionendetektoren und der Bestimmung von kinetischen Energieverteilungen auf Basis der Gegenfeldmethode, sei auf [206] verwiesen.

### 2.3.2 Pulsed Buncher Tube - Funktionsweise

Die gepulste Extraktion hochgeladener Ionen aus der EBIT ermöglicht einen elektrodynamischen, im Gegensatz zum weit verbreiteten elektrostatischen, Abbremsvorgang. Der damit verbundene physikalische Vorteil besteht in der Aufhebung der mit dem Liouvilleschen Theorem einhergehenden Beschränkungen [213], wohingegen auf der technischen Seite die Notwendigkeit einer Hochspannungs-Plattform auf Paulfallen-Seite entfällt.

Die beiden gezackten Elektroden aus Abbildung 2.9 können, durch das Anlegen einer einheitlichen positiven Abbremsspannung  $V_{PDT1} = V_{PDT2}$ , als ca. 325 mm lange, einzelne, gepulste Driftröhre betrieben werden. Sollen einlaufende HCI-Pakete mit mittlerer Extraktionsenergie  $Qe\bar{V}_{extr}$  auf  $Qe\bar{V}_f$  abgebremst werden, so wird an die Abbremsseinheit eine Spannung von  $(\bar{V}_{extr} - \bar{V}_f)$  angelegt. Damit verlieren die HCIs longitudinale kinetische Energie, wenn sie den positiven Potentialhügel erklimmen müssen. Bewegen sich die HCI-Pakete nach dem Energieverlust innerhalb des feldfreien Bereichs der Abbremsseinheit, so werden beide Elektroden zeitgleich



**Abbildung 2.9:** Longitudinale Kompression des Phasenraumvolumens extrahierter HCI-Pakete mittels eines gepulsten, linear ansteigenden Abbremspotentials (grüne Kurve). An die gezackten Elektroden angelegte Abbremsspannungen werden gleichzeitig, bei Ankunft eines gemeinsamen TTL Trigger-Signals auf 0 V (gepunktete, magentafarbene Gerade) geschaltet. Schwarze Kurven über den symbolisch dargestellten HCI-Paketen (blaue Kugeln) entsprechen den jeweiligen schematischen longitudinalen kinetischen Energieverteilungen. Teilweise entnommen aus der, während dieser Promotionsforschung, erstellten Veröffentlichung [200].

auf Erdpotential herunter geschaltet, so dass die HCI Pakete das Abbremssystem mit verringerter mittlerer kinetischer Energie verlassen. Die Breite der kinetischen Energieverteilung bleibt hier während des Abbremsprozesses erhalten, so dass die relative Breite, in Bezug auf die mittlere kinetische Energie des Ionenpaketes, vergrößert wird. Ohne Herunterschalten der angelegten Abbremsspannungen würden die HCIs wieder ihre ursprüngliche kinetische Energie erhalten, wenn sie den Potentialhügel am Ende des Elektroden-Systems herunter rollen. Der einzige entstandene Effekt bestünde dann in einer Veränderung der, mittels der Ionendetektoren (BD1) und (BD2) messbaren, Flugzeiten der HCI-Pulse, da selbige die Strecke innerhalb der Elektroden mit niedrigerer Geschwindigkeit im Vergleich zu dem Fall, wenn beide Elektroden geerdet wären, zurücklegen würden.

Wie in Abbildung 2.9 schematisch illustriert können die angelegten Spannungen der Abbremsseinheit unabhängig voneinander auch so eingestellt werden, dass die HCI-Pakete simultan zur Verringerung der mittleren kinetischen Energie eine Reduktion der Breite ihrer longitudinalen kinetischen Energieverteilung erhalten. Dazu wird die, aus Sicht der einlaufenden HCI-Pakete, erste gezackte Elektrode auf ein niedrigeres Abbremspotential als die zweite gelegt:  $V_{PDT1} < V_{PDT2}$ . Dadurch entsteht im Überlappungs-Bereich der beiden gezackten Elektroden ein linear ansteigendes Abbremspotential. Die angelegten Abbremsspannungen werden genau dann, bei Ankunft eines gemeinsamen TTL Trigger-Signals, auf Erdpotential herunter gepulst, wenn sich die HCIs mit anfänglicher mittlerer Extraktionsenergie, in der Mitte des Überlappungs-Bereichs befinden. Dadurch wurden die schnelleren Ionen im Puls,

mit höherer anfänglicher Energie  $QeV_i > Qe\bar{V}_{extr}$ , zum gemeinsamen Schaltzeitpunkt stärker abgebremst als die Norm-Ionen mit vorheriger mittlerer kinetischer Energie. Genau das Umgekehrte gilt für die langsameren HCIs in einem Paket, die zum Schaltzeitpunkt  $t_S$  weniger stark abgebremst wurden als die Norm-Ionen. Ein HCI-Paket verlässt die Abbremsereinheit somit mit niedrigerer mittlerer, longitudinaler kinetischer Energie  $Qe\bar{V}_f$ , zusammen mit einer reduzierten Breite der Energieverteilung.

Basis des Vorkühlens der HCI-Pakete ist, neben der Verwendung transientser Spannungs-Pulse zur Umgehung des Liouvilleschen Theorems, die Korrelation zwischen der HCI-Position innerhalb des linear ansteigenden Abbrems-Potentials zum Schaltzeitpunkt und ihrer jeweiligen anfänglichen longitudinalen kinetischen Energie.

Die longitudinale Phasenraumkompression der HCI-Pakete erhöht die Effizienz des Implantations-Vorgangs hochgeladener Ionen in lasergekühlte  $Be^+$ -Coulomb-Kristalle, durch Erhöhung der Anzahl an HCIs in einem Energiebereich der für das Stoppen der Ionen im  $Be^+$ -Kristall geeignet ist.

Vorkühlen und Abbremsen auf die gewünschte Injektions-Energie können nur durch die präzise Auswahl eines geeigneten Schaltzeitpunktes, sowie geeigneter Spannungs-kombinationen für die gezackten Elektroden realisiert werden. Diese Parameter müssen als Feinjustage letztendlich experimentell bestimmt werden. Für eine Abschätzung der zu verwendeten Parameter, bei bekannter mittlerer Extraktionsenergie und gewünschter Injektions-Energie, kann ein vereinfachtes, eindimensionales, theoretisches Modell der Ionenbewegung zu Rate gezogen werden. Dieses wird, zusammen mit der Validierung durch SIMION-Simulationen im nächsten Kapitel vorgestellt und hat sich auch im Vergleich mit dem Experiment bewährt.

### 2.3.3 Pulsed Buncher Tube - Theoretisches Modell

Ausgangspunkt zur Berechnung von Energie-, Positions- und Flugzeitverteilungen der extrahierten Ionenpakete mittels eines 1-dim., theoretischen Modells ist eine diskretisierte Normalverteilung der longitudinalen kinetischen Energie des HCI-Paketes. Dabei wird, wie es auch im Experiment der Fall ist, angenommen, dass für alle Ionen in einem HCI-Paket das gleiche  $Q/M$ -Verhältnis vorliegt. Eine beispielhafte, diskretisierte Gaussche kinetische Energieverteilung ist in Abbildung 2.11 a) für  $Qe\bar{V}_{extr} = 680\text{eV}/Q$  und  $QeV_\sigma = 10.6\text{eV}/Q$  zu sehen. Hierfür wurden 20000 pseudozufällige Zufallsvariablen einer anzunehmenden kontinuierlichen Gaussverteilung mittels Mathematica [214] erzeugt (`RandomVariate[NormalDistribution[\bar{V}_{extr}, V_\sigma], Anzahl HCIs]`).

Für das einfache, eindimensionale, theoretische Modell des Vorkühlprozesses mittels der beiden gezackten Elektroden, wird die Bewegung der HCIs eines extrahierten Ionenpaketes mit einheitlichem  $Q/M$ -Verhältnis, in drei Regionen I-III unterteilt (vergleiche Abbildung A.1 aus Kapitel A.1). Innerhalb dieser Bereiche wird stets die Bewegung des  $i$ -ten HCIs mit kinetischer Energie von  $QeV_i$  unmittelbar nach der Extraktion sowie die Bewegung des Normions eines HCI-Paketes betrachtet. Das Normion ist dabei als ein HCI definiert, das genau eine kinetische Energie von

$Qe\bar{V}_{extr}$  unmittelbar nach Extraktion besitzt.

Die ersten  $s_I = 1527$  mm bis zum Eintritt in PDT1 bewegen sich das  $i$ -te HCI bzw. das Normion geradlinig gleichförmig mit der Geschwindigkeit  $v_i^I = \sqrt{V_i 2Qe/M}$  bzw.  $\bar{v}^I = \sqrt{(\bar{V}_{extr}) 2Qe/M}$ . Die Bewegung im anschließenden  $s_{II} = 95$  mm langen Bereich bis zum Beginn der Überlappungs-Region erfolgt ebenfalls geradlinig gleichförmig, jedoch mit verringerter Geschwindigkeit  $v_i^{II} = \sqrt{(V_i - V_{PDT1}) 2Qe/M}$  bzw.  $\bar{v}^{II} = \sqrt{(\bar{V}_{extr} - V_{PDT1}) 2Qe/M}$ . Innerhalb des Überlappungs-Bereichs der beiden gezackten Elektroden mit geometrischer Gesamtlänge  $d$  bewegen sich die einzelnen HCIs im Paket mit  $a = -(V_{PDT2} - V_{PDT1}) Qe/(Md)$  gleichmäßig beschleunigt. Das, auf das  $i$ -te HCI wirkende, gesamte Abbremspotential  $V_{ir}$ , zum gemeinsamen Schaltzeitpunkt  $t_S$ , ist durch

$$V_{ir} = (V_{PDT2} - V_{PDT1}) z_i/d + V_{PDT1} \quad (2.11)$$

festgelegt, wobei  $z_i$  für die Position des  $i$ -ten HCIs innerhalb des Überlappungs-Bereichs von PDT1 und PDT2 zum Schaltzeitpunkt steht. Der Nullpunkt  $z_i = 0$  ist durch den Beginn des Überlappungs-Bereiches definiert. Das  $i$ -te HCI im extrahierten Puls verlässt die Abbremsenheit mit einer longitudinalen kinetischen Energie von  $Qe(V_i - V_{ir})$ .

Angenommen die mittlere kinetische Energie des HCI-Paketes von der ursprünglichen Extraktions-Energie  $Qe\bar{V}_{extr}$  soll auf die, für den zweiten Abbremsvorgang direkt vor der Paulfalle notwendige mittlere Energie  $Qe\bar{V}_f$  verringert werden. Dann kann der dafür notwendige Schaltzeitpunkt  $t_S$  für das gleichzeitige Herunterpulsen der beiden gezackten Elektroden, unter der Bedingung

$$\frac{(V_{PDT2} + V_{PDT1})}{2} = \bar{V}_{extr} - \bar{V}_f \quad \text{mit} \quad 0 < V_{PDT1} < V_{PDT2} \quad (2.12)$$

mit der Flugzeit des Normions bis zum Mittelpunkt  $d/2$  des Überlappungs-Bereichs gleichgesetzt werden:

$$t_S = \tilde{t}_S + \frac{s_{II}}{\bar{v}_{II}} + \frac{s_I}{\bar{v}_I} \quad \text{mit} \quad \frac{d}{2} = \frac{1}{2} a \tilde{t}_S^2 + \bar{v}_{II} \tilde{t}_S. \quad (2.13)$$

Der Zeitanteil  $\tilde{t}_S$  des gemeinsamen Schaltzeitpunktes kann zur Bestimmung der Position  $z_i$  des  $i$ -ten HCIs im Ionenpaket innerhalb des Überlappungs-Bereichs der gezackten Abbrems Elektroden verwendet werden. Dabei ist der Nullpunkt  $z_i = 0$  durch den Beginn des Überlappungs-Bereiches definiert. Für  $z_i$  gilt die Beziehung:

$$z_i = \frac{1}{2} a (\tilde{t}_S - (t_i - \bar{t}))^2 + v_i^{II} (\tilde{t}_S - (t_i - \bar{t})) , \quad (2.14)$$

dabei stehen  $t_i$  bzw.  $\bar{t}$  für die Flugzeiten des  $i$ -ten HCIs bzw. des Normions durch die beiden ersten Regionen I und II. Damit ist  $(t_i - \bar{t})$  die Zeitdifferenz zwischen dem Eintritt des  $i$ -ten HCIs und des Normions in den Bereich III.

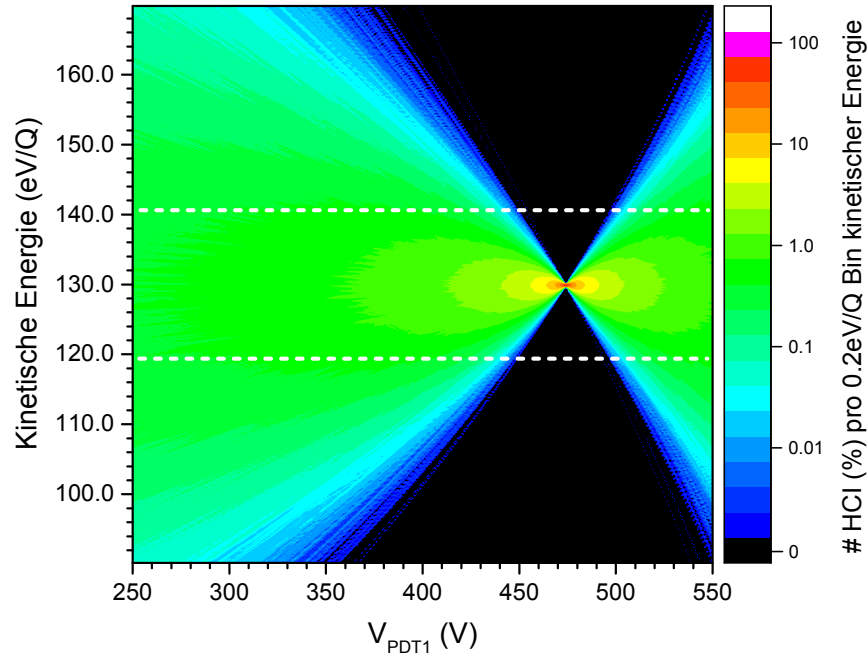
Da die Zeitdifferenzen aus Gleichung (2.14) allesamt proportional zu  $1/(\sqrt{Q/M})$



sind, während die Beschleunigung  $a$  proportional zu  $Q/M$  und die Geschwindigkeit  $v_i^{\text{II}}$  proportional zu  $\sqrt{Q/M}$  ist, sieht man direkt an Gleichung (2.14), dass die Positionsverteilung der HCIs eines Ionenpaketes zum Schaltzeitpunkt im Überlappungsbereich unabhängig von Ladung und Masse der HCIs ist. Sie hängt vielmehr nur von den angelegten Spannungen und Abständen, d.h. vom Gesamt-Potentialverlauf ab. Die gleiche Unabhängigkeit von  $Q$  und  $M$  gilt folglich auch für die, auf den Ladungszustand  $Q$ , normierte Energieverteilung der abgebremsten und vorgekühlten HCI-Pakete.

Eine komplette Herleitung der Ausdrücke für  $z_i(V_i, \bar{V}_{extr}, \bar{V}_f, V_{PDT1}, s_I, s_{II}, d)$  und  $V_{ir}(V_i, \bar{V}_{extr}, \bar{V}_f, V_{PDT1}, s_I/d, s_{II}/d)$  findet man in Kapitel A.1 auf den Seiten 201-206.

Um die Spannungscombination ( $V_{PDT1}, V_{PDT2}$ ) zu bestimmen, die bei gegebener longitudinaler kinetischer Energieverteilung nach Extraktion und gewünschter mittlerer kinetischer Energie für die Injektion in die Paulfalle, zur minimalen Energiebreite der Energieverteilung im HCI-Paket führt, kann der Wert von  $V_{PDT1}$  bestimmt werden, der den energetischen Abstand nach Abbremsen und Vorkühlen der HCIs mit Extraktions-Energien  $Qe(\bar{V}_{extr} + V_\sigma)$  und  $Qe(\bar{V}_{extr} - V_\sigma)$  minimiert



**Abbildung 2.10:** Berechnete Verteilungen longitudinaler kinetischer Energie eines HCI-Paketes nach dem Abbremsen in Abhängigkeit der Spannung  $V_{PDT1}$ . Letztere legt das Vorkühlen über die Bedingung  $(V_{PDT2} + V_{PDT1})/2 = \bar{V}_{extr} - \bar{V}_f$  fest. Beachte die logarithmische Intensitätsskala. Berechnet für je 80000 HCIs je  $V_{PDT1}$  Wert. Vertikale Achse enthält den Prozentsatz an HCIs je Bin von 0.2 eV/Q an kinetischer longitudinaler Energie. Die weißen, gestrichelten Linien definieren die Breite  $2QeV_\sigma$  der Energieverteilung eines ohne Vorkühlen abgebremsten HCI-Paketes. Für die Berechnungen galt je  $Qe\bar{V}_{extr} = 680 \text{ eV}/Q$ ,  $QeV_\sigma = 10.6 \text{ eV}/Q$  und  $Qe\bar{V}_f = 130 \text{ eV}/Q$ .

(siehe Kapitel A.1 Abb. A.2 und Gleichung (A.12)). Alternativ kann man die longitudinale kinetische Energieverteilung der HCI-Pakete nach dem Abbremsen mittels Gleichung (2.11) (expliziter Rechenausdruck ist in Kapitel A.1 Gleichung (A.11) gegeben) in Abhängigkeit der an PDT1 angelegten Abbremsspannung  $V_{PDT1}$ , z.B. durch Mathematica, für eine größere Anzahl an HCIs pro Paket berechnen. Eine solche Berechnung ist in Abbildung 2.10, für experimentell typische Parameter von  $Qe\bar{V}_{extr} = 680 \text{ eV}/Q$ ,  $QeV_\sigma = 10.6 \text{ eV}/Q$  und  $Qe\bar{V}_f = 130 \text{ eV}/Q$ , zu sehen.

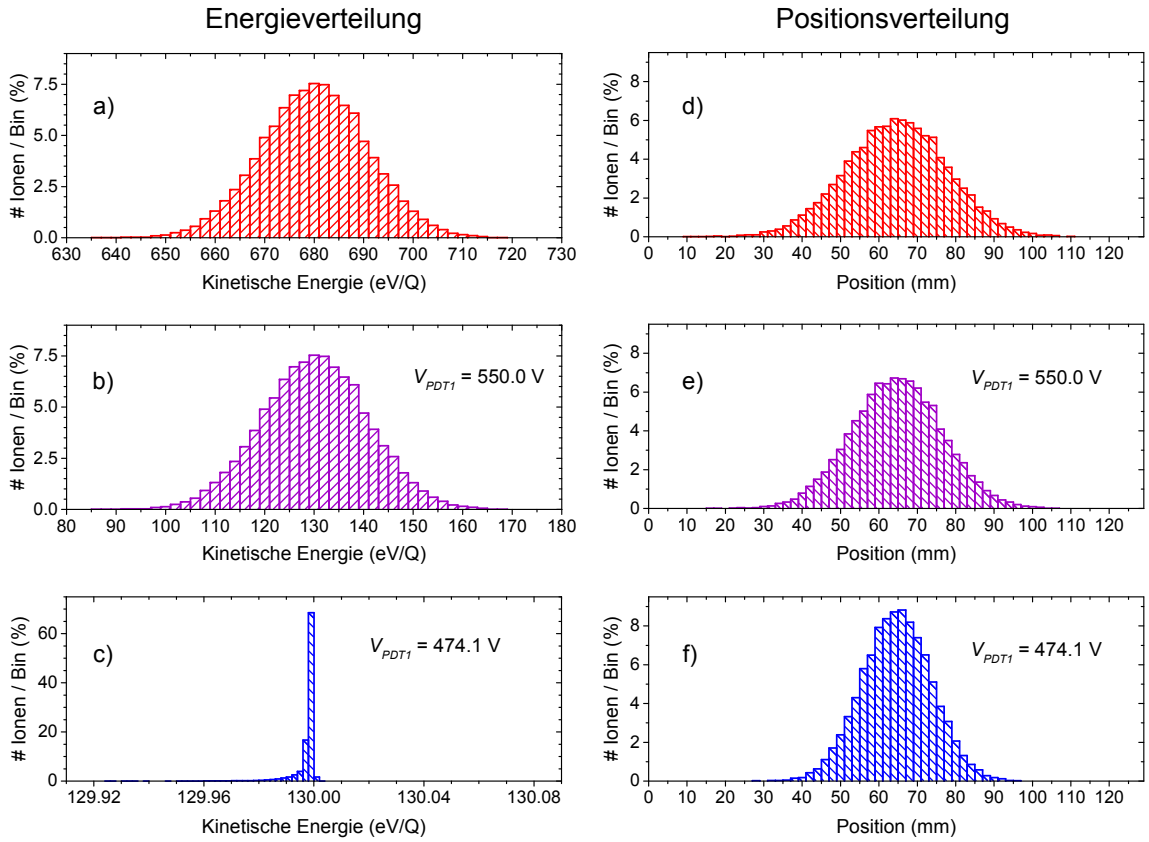
Die Werte der Abbremsspannung  $V_{PDT1}$  wurden in Schritten von 1 V erhöht. Die vertikale Achse zeigt Histogramme mit einer Klassenbreite von  $0.2 \text{ eV}/Q$  der jeweils berechneten longitudinalen kinetischen Energieverteilung nach dem Abbremsen. Die weißen, gestrichelten Linien definieren die Breite  $2QeV_\sigma$  der Energieverteilung eines ohne Vorkühlen abgebremsten HCI-Paketes. Man erkennt, dass für  $V_{PDT1} \in (370 \text{ V}, 550 \text{ V})$ , die Energiebreite der Verteilung nach dem Abbremsen kleiner als die Energiebreite des unabgebremsten HCI-Paketes wird. Für steilere Verläufe des, im Überlappungs-Bereich der gezackten Elektroden, linear ansteigenden Abbremspotentials werden HCIs, die nach Extraktion schneller als das Normion waren, auf kinetische Energien, die kleiner als die des abgebremsten Normions sind, verlangsamt. Dieser Umkehreffekt setzt für PDT1 Spannungen  $< 474 \text{ V}$  ein. Wird die Steigung des Abbremspotentials zu groß, so erhält man abgebremste HCI-Pakete, deren Energiebreite im Vergleich zur Breite der Energieverteilung nach Extraktion, vergrößert wurde. In dem in Abbildung 2.10 gezeigten realistischen Beispiel ist dies für  $V_{PDT1} < 474 \text{ V}$  der Fall. Um den Vorkühl-Effekt eines linear ansteigenden elektrodynamischen Abbremspotentials nutzen zu können, muss man folglich die richtige Wahl der Abbremsspannungen, über Gleichung (2.12) festgelegt durch  $V_{PDT1}$ , individuell je Parametersatz ( $\bar{V}_{extr}$ ,  $V_\sigma$ ,  $\bar{V}_f$ ,  $s_I/d$ ,  $s_{II}/d$ ) treffen.

Wie Abbildung 2.10 zeigt, ist eine Reduktion der Energiebreite des abgebremsten HCI-Paketes um eine Größenordnung, im Vergleich zum extrahierten bzw. ohne Vorkühlen abgebremsten HCI-Paketes, nach dem theoretischen Modell für  $V_{PDT1} \in (465 \text{ V}, 483 \text{ V})$  möglich. Diese moderate Reduktion der Energiebreite ist somit über einen Bereich von 18 V möglich und stellt weder strenge Anforderungen an Drifts der Netzteile noch wäre eine präzise Einstellung für solch eine Reduktion notwendig.

### Energie- und Ortsverteilungen

In Abbildung 2.11 links werden drei berechnete, auf die Ladung normierte, longitudinale kinetische Energieverteilungen eines HCI-Paketes in Histogramm-Darstellung verglichen. Bei der Energieverteilung in Abb. 2.11 a) handelt es sich um die diskretisierte Gausssche Anfangsverteilung der kinetischen Energie eines extrahierten Ionenpaketes mit  $Qe\bar{V}_{extr} = 680 \text{ eV}/Q$  und  $QeV_\sigma = 10.6 \text{ eV}/Q$ , in Abb. 2.11 b) sieht man die Energieverteilung, die sich aus a) nach Abbremsen auf  $Qe\bar{V}_f = 130 \text{ eV}/Q$  ohne Vorkühlen, dh. mit  $V_{PDT1} = V_{PDT2} = 550 \text{ V}$ , ergibt. Wie man sieht, entsteht b) aus a), indem der Schwerpunkt der Verteilung zur kleineren Energie  $Qe\bar{V}_f = 130 \text{ eV}/Q$  verschoben wird, während die Energiebreite erhalten bleibt. Die relative Energiebreite, bezogen auf die mittlere kinetische Energie der Verteilung nimmt

hier folglich zu. In Abb. 2.11 c) ist die kinetische Energieverteilung eines, mit zusätzlich maximalem Vorkühlen ( $V_{PDT1} = 474.1$  V, vergleiche Abbildungen 2.10 und A.2), auf  $Qe\bar{V}_f = 130$  eV/ $Q$  abgebremsten HCI-Paketes zu sehen. Hierbei ist insbesondere die zu a) und b) verschiedene Skalierung der beiden Diagramm-Achsen zu beachten. Da die, mit starkem Vorkühlen, abgebremsten HCI-Pakete nicht mehr notwendigerweise eine Gaussische Energieverteilung aufweisen, kann man für einen Vergleich der Energiebreiten der in Abb. 2.11 b) und c) gezeigten Verteilungen, für c) als Breite das Energieintervall, in dem sich 68% der HCIs befinden definieren. Dann würde sich, für den betrachteten realistischen Parametersatz von



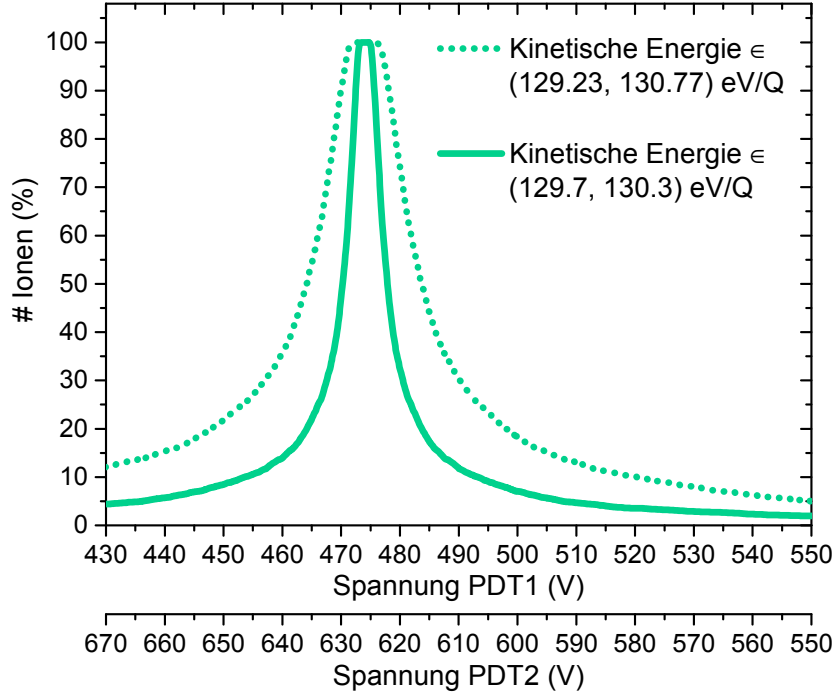
**Abbildung 2.11:** Auf die Ladung normierte Energieverteilungen a)-c) von HCIs mit beliebigem  $Q/M$ -Verhältnis: Longitudinale kinetische Energieverteilungen. a) ist als kinetische Energieverteilung mit  $Qe\bar{V}_{extr} = 680$  eV/ $Q$  und  $QeV_\sigma = 10.6$  eV/ $Q$  nach der Extraktion Ausgangspunkt für sämtliche Berechnungen nach dem 1-dim., theoretischen Modell. Die Wahl von  $V_{PDT1} = 474.1$  V beim Abbremsen mit Vorkühlen führt zu einem Ionenpaket mit maximal reduzierter Energiebreite für die vorgegebenen Parameter. Auf die Ladung normierte Positionsverteilungen d)-f) von HCIs mit beliebigem  $Q/M$ -Verhältnis: Zu a)-c) korrespondierende (Zuordnung erfolgt innerhalb einer Zeile), berechnete Positionsverteilung der Ionen eines HCI-Paketes zum Schaltzeitpunkt  $t_S$  innerhalb des  $d = 129$  mm langen Überlappungs-Bereiches der gezackten Abbremsselektroden unter verschiedenen Bedingungen. d) unabgebremstes Ionenpaket mit  $Qe\bar{V}_{extr} = 680$  eV/ $Q$ , e) ohne Vorkühlen ( $V_{PDT1} = V_{PDT2}$ ) auf  $Qe\bar{V}_f = 130$  eV/ $Q$  abgebremstes Ionenpaket, f) mit Vorkühlen auf  $Qe\bar{V}_f = 130$  eV/ $Q$  abgebremstes Ionenpaket für  $V_{PDT1} = 474.1$  V.

( $V_{PDT1} = 474.1 \text{ V}$ ,  $Qe\bar{V}_{extr} = 680 \text{ eV}/Q$ ,  $QeV_\sigma = 10.6 \text{ eV}/Q$ ,  $Qe\bar{V}_f = 130 \text{ eV}/Q$ ,  $s_I/d = 11.84$ ,  $s_{II}/d = 0.74$ ), eine, nach dem einfachen theoretischen Modell des Vorkühlprozesses, maximal zu erwartende Verkleinerung der Energiebreite um mehr als drei Größenordnungen ergeben (Verkleinerung um ca. Faktor 5300). Für, unter realen experimentellen Bedingungen, extrahierte HCI-Pakete ist, je nach Situation, von einer verringerten Energiebreiten-Reduktion auszugehen, wie schon im Vergleich mit SIMION-Simulationen am Ende dieses Kapitels diskutiert werden wird.

Bei den Grafiken in Abbildung 2.11 d)-f) handelt es sich um die, zu a)-c) korrespondierenden, auf die Ladung  $Q$  normierten, Positionsverteilungen des HCI-Paketes zum Schaltzeitpunkt  $t_S$  innerhalb des  $d = 129 \text{ mm}$  langen Überlappungs-Bereiches der gezackten Abbremsselektroden. Es wurden je die gleiche Dimensionierung und Skalierung für die Achsenabschnitte der Diagramme, zur besseren Vergleichbarkeit, gewählt. Zum einen wird deutlich, dass die Länge des Überlappungs-Bereichs mit ausreichend Spiel dimensioniert wurde, so dass auch auf niedrigere kinetische Energien abgebremst werden kann. Des Weiteren muss der Schaltzeitpunkt dann auch nicht zwangsläufig so gewählt werden, dass sich das Normion dann bei  $d/2$  befindet. Zum Anderen zeigt sich, dass die Positionsverteilungen der abgebremsten Ionenpakete schmaler sind, wobei die Ausprägung des Effektes für das Abbremsen mit Vorkühlung (Diagramm f)) ausgeprägter ist als für den Fall ohne Vorkühlung (Diagramm e)). Für das Beispiel aus Abb. 2.11, nimmt die Standardabweichung  $z_\sigma$  der Positionsverteilung, ausgehend von  $13.1 \text{ mm}$  für den unabgebremsten Fall, über  $9.6 \text{ mm}$  für das Abbremsen ohne Vorkühlen bis auf  $8.9 \text{ mm}$  für den Fall mit Vorkühlen ab. Für den Fall, dargestellt in Diagramm e), kommt die Kompression der Ortsverteilung dadurch zu Stande, dass die schnelleren Ionen im Puls sich nach Eintritt in PDT1 deutlich langsamer bewegen als die langsameren Ionen im Puls, die sich zu diesem Zeitpunkt noch unabgebremst PDT1 nähern. Durch die geringe, bis zum Schaltzeitpunkt zurück zu legende Strecke bleibt ein Großteil der Ortskompression erhalten. Für das Abbremsen mit Vorkühlen findet durch das linear ansteigende Abbremspotential eine zweite derartige Ortskompression statt. Für das Abbremsen mit Vorkühlen ergibt sich somit unmittelbar nach dem Schaltzeitpunkt sowohl eine Kompression der Orts- wie auch der longitudinalen Impulsverteilung.

### Prozentsatz an HCIs in spezifischem Energieintervall

Das in Abb. 2.11 c) gezeigte Histogramm der longitudinalen Energieverteilung der HCIs nach dem Abbremsen mit Vorkühlen wurde für  $V_{PDT1} = 474.1 \text{ V}$  berechnet, da sich hier die mit der vorgestellten Methode minimal erreichbare Energiebreite für die gegebenen Startbedingungen des HCI-Paketes und die gewünschte Injektionsenergie ergibt. Diese minimale Energiebreite entspricht einem maximalen Prozentsatz  $p_{max}$  an HCIs pro Ionenpaket, deren longitudinale Energien nach Abbremsen in einem bestimmten Intervall kinetischer Energie sind. Bei dem Prozentsatz  $p_{max}$  handelt es sich um die, für das Wiedereinfangen der HCI-Pakete in der Paulfalle (engl. Retraping), entscheidende Kenngröße der Abbremseneinheit. 90 % der abgebremsten HCIs befinden sich in einem Intervall longitudinaler kinetischer Energien von  $\pm 0.3 \text{ eV}$  um  $130 \text{ eV}/Q$  für  $V_{PDT1} \in (472.4 \text{ V}, 475.7 \text{ V})$ . Die Breite dieses Intervalls spricht für die



**Abbildung 2.12:** Berechnung, auf Grundlage des eindimensionalen, theoretischen Modells, des Prozentsatzes an HCIs innerhalb bestimmter Intervalle auf  $Q$  normierter longitudinaler kinetischer Energie, in Abhängigkeit verschiedener Spannungscombinationen der gezackten Abbrems-elektroden PDT1 und PDT2. Die an PDT1 angelegte Spannung  $V_{PDT1}$  legt, über die Bedingung  $(V_{PDT1} + V_{PDT2})/2 = \bar{V}_{extr} - \bar{V}_f$ , die an PDT2 anzulegende Abbremsspannung fest. Für das gezeigte Beispiel wurden die, für das Experiment realistischen, Werte  $Qe\bar{V}_{extr} = 680 \text{ eV}/Q$  und  $Qe\bar{V}_f = 130 \text{ eV}/Q$  gewählt.

Robustheit des Abbremsystems nach dem vorgestellten, theoretischen Modell. Während in Abbildung 2.10 die Breite der longitudinalen kinetischen Energieverteilung der HCI-Pakete nach dem Abbremsen in Abhängigkeit der, an PDT1 angelegten Abbremsspannung, betrachtet wurde, zeigt Abbildung 2.12 die, für das sympathetische Stoppen der HCIs durch das Bremsvermögen des  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalls, relevante Größe  $p(V_{PDT1})$  in Abhängigkeit des Abbremspotentials. Dabei bezeichnet  $p$  den Prozentsatz an HCIs aus einem extrahierten Ionenpaket, deren Energie sich in einem für das weitere Experiment relevanten Energiebereich befindet. Zusammenfassend lässt sich hier sagen, dass sich 100 % der  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen eines, mit  $Qe\bar{V}_{extr} = 680 \text{ eV}/Q$  und  $QeV_\sigma = 10.6 \text{ eV}/Q$ , extrahierten HCI-Paketes im Bereich von  $\pm 4 \text{ eV}$  um  $13 \times e\bar{V}_f = 13 \times 130 \text{ eV}$  befinden, wenn das HCI-Paket mittels zusätzlichem Vorkühlen durch  $V_{PDT1} \in (473.5 \text{ V}, 474.5 \text{ V})$  abgebremst wurde. Verringerung der mittleren longitudinalen kinetischen Energie um den selben Betrag, aber ohne Vorkühlen ( $V_{PDT1} = V_{PDT2} = 550 \text{ V}$ ) führt zu einem Prozentsatz von 2 % an  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen eines extrahierten Pulses, deren Energien sich im Intervall von  $\pm 4 \text{ eV}$  um  $13 \times e\bar{V}_f = 13 \times 130 \text{ eV}$  befinden. Die Integration des vorgestellten Vorkühlkonzeptes in den Abbremsprozess ermöglicht damit eine 50-fache Erhöhung des,

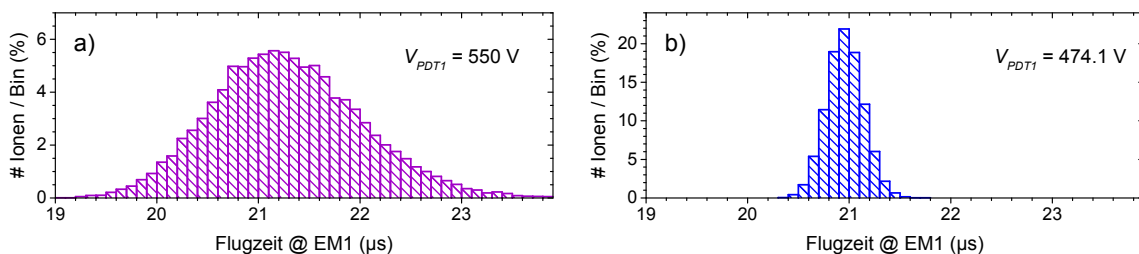
pro Extraktions-Zyklus, zur Verfügung stehenden Prozentsatzes an  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen mit kinetischen Energien im, für die Injektion in die Paulfalle und das sympathetische Stoppen, relevanten Energieintervall.

### Flugzeitverteilungen - zeitliche Akzeptanz der Paulfalle

Eine weitere, technisch relevante, Kenngröße der abgebremsten HCI-Pulse, die sich direkt aus der Energieverteilung ableiten lässt, ist die zeitliche Breite der Pulse am Ort des 1-ten elektrostatischen Spiegels EM1 direkt am Eingang der Paulfalle. Ein direkter Ausdruck für die Flugzeit des  $i$ -ten HCIs im Ionenpuls wird in Kapitel A.1 hergeleitet und ist dort in Gleichung (A.13) zusammengefasst. Beispielhafte Flugzeitverteilungen sind für die, durchgängig innerhalb dieses Kapitels gewählten energetischen Start- und Endbedingungen, in Abbildung 2.13 für den Fall des Abbremsens ohne (Diagramm a)) bzw. mit maximalem (Diagramm b)) Vorkühlen dargestellt.

Die FWHM Breiten der angenommenen gaussförmigen Flugzeitverteilungen für die beiden Fälle ergeben sich zu  $1.73\ \mu\text{s}$  (Abb. 2.13 a)) bzw. zu  $0.42\ \mu\text{s}$  (Abb. 2.13 b)). Diese Breiten sind im Vergleich zu der FWHM Flugzeitbreite im unabgebremsten Fall von  $0.39\ \mu\text{s}$  zu sehen. Trotz der selben Breite der kinetischen Energieverteilung für den unabgebremsten bzw. ohne Vorkühlen abgebremsten HCI-Puls, ist die Flugzeitverteilung des abgebremsten Pulses wesentlich breiter, da es für selbigen zu einer Vergrößerung der relativen Energiebreite in Bezug auf die mittlere kinetische Energie kommt. Die mittlere Flugzeit liegt für den Fall des Abbremsens ohne Vorkühlen leicht höher als für den Fall mit Vorkühlen. Dies kann durch die kleinere mittlere Geschwindigkeit des, ohne Vorkühlen abgebremsten, HCI-Pakets in Bewegungsbe- reich II erklärt werden.

Für ausreichende Flexibilität bei der Injektion der HCI-Pakete in die Paulfalle, wird der 1-te elektrostatische Spiegel EM1, pro Extraktions-/Injektions-Zyklus, einmal für ein kurzes Zeitfenster von ca.  $3\ \mu\text{s}$  auf Erdpotential geschaltet. Da die Schaltprozesse der Spannungen keinen Stufenfunktionen entsprechen ist das real nutzbare Zeitfenster um etwas mehr als einen Faktor zwei kleiner. Dies würde bei, ohne



**Abbildung 2.13:** Berechnete Flugzeitverteilungen für  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpakete am Ort des ersten elektrostatischen Spiegels ((EM1) in Abb. 2.1), direkt vor der Paulfalle. a) Flugzeitverteilung für mittels  $V_{PDT1} = 550\ \text{V}$ , d.h. ohne Vorkühlen, von  $Qe\bar{V}_{extr} = 680\ \text{eV}/Q$  auf  $Qe\bar{V}_f = 130\ \text{eV}/Q$  abgebremstes  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpaket. b) Flugzeitverteilung für ein mittels  $V_{PDT1} = 474.1\ \text{V}$ , d.h. mit Vorkühlen, abgebremstes  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpaket. Gleiche Werte für  $\bar{V}_{extr}$  und  $\bar{V}_f$  wie in a).

Vorkühlen, abgebremsen HCI-Paketen zu einem Verlust an injizierbaren HCIs pro Zyklus, führen. Daher trägt die zeitliche Fokussierung der Ionenpakete am Ort von EM1 ebenfalls zur erhöhten Effizienz des HCI-Implantations-Prozesses bei.

Das vorgestellte theoretische Modell ist zwar 1-dim., dabei aber nicht auf HCI-Flugbahnen entlang der Symmetrieachse der Abbremsselektroden beschränkt. Wie die FEM-Simulation aus 2.14 c) des räumlich gemittelten Potentials in der Schnittebene durch die Mitte des Überlappungs-Bereiches, für angelegte Spannungen von  $V_{PDT1} = 450 \text{ V}$  und  $V_{PDT1} = 650 \text{ V}$ , demonstriert, betragen die Abweichungen des Potentials innerhalb eines Kreises mit Durchmesser von 22 mm vom eingestellten mittleren Abbremspotential von 550 V weniger als 0.1 %. Wesentliche Limitierungen des 1-dim. Modells bestehen in der Annahme, die gezackten Elektroden würden unendlich schnell auf Erdpotential herunter geschaltet, der Annahme des stufenförmigen Übergangs von 0 V nach  $V_{PDT1}$ , sowie in der Vernachlässigung einer transversalen Divergenz des HCI-Paketes und in der Vernachlässigung von Raumladungseffekten. SIMION-Simulationen, welche diese Effekte berücksichtigen, zeigen qualitativ keine wesentlichen Unterschiede zu dem theoretischen Modell. Ihre Ergebnisse zeigen jedoch quantitative Abweichungen bezüglich des maximal erreichbaren Prozentsatzes  $p_{max}$  an HCIs in einem gewünschten Energieintervall nach der Abbremsung, wie im nächsten Abschnitt beschrieben.

### Vergleich mit SIMION-Simulationen

Die Geometrie der gezackten Abbremsselektroden wird, zusammen mit der benachbarten Ionenoptik und umgebenden, geerdeten Vakuumkammer, mittels CAD-Modell-Import in der SIMION-Simulationssoftware [215] modelliert. Die Wegstrecke zwischen Startposition der HCI-Pakete und der Position der Einzellinse (E1) entspricht dabei möglichst genau den experimentellen Gegebenheiten. Die zeitabhängigen Abbremsspannungen werden mittels eines Skript-basierten Benutzer-Programms eingebunden. Solange die mittlere Flugzeit (engl. time-of-flight oder kurz TOF) eines HCI-Paketes kleiner als der eingestellte Schaltzeitpunkt  $t_S$  ist, werden konstante Abbremsspannungen  $V_{PDT1/2}$  an die gezackten Elektroden angelegt. Sobald die mittlere Flugzeit dem Schaltzeitpunkt entspricht, beginnt SIMION die angelegten Spannungen exponentiell, mit einer Zeitkonstante von  $\tau = 0.11 \text{ ps}$ , auf Erdpotential herunter zu fahren. Dafür werden die Ionen-Zeitschritte mit dem Schaltzeitpunkt synchronisiert. Der Wert für die Zeitkonstante  $\tau$  stammt aus SPICE-Simulationen [216] der zeitabhängigen Potentiale der gezackten Elektroden während des Abbrems-Prozesses. Als Grundlage dieser Simulationen dient ein elektronisches Modell der Abbrems-Elektroden samt zugehöriger elektronischer Schaltungen. Die Elektroden selbst werden als eine Kombination aus Kapazitäten gegeneinander (70 pF) und gegen die Vakuum-Kammer (70 pF) modelliert. Hierbei basiert die Schaltelektronik auf zwei schnellen Hochspannungs-Transistor-Schaltern (Behlke HTS31), die synchron durch ein TTL-Signal von einem Delay-Generator getriggert werden. Wobei der zeitliche Nullpunkt des Delay-Generators pro Extraktions-Zyklus durch den Extraktionszeitpunkt der HCIs aus der EBIT gegeben ist. Die simulierte Zeitkonstante wurde experimentell mittels einer Oszilloskop-Messung bestätigt. Für

einen detaillierten Überblick zur Schaltelektronik sei auf [206] verwiesen.

Die Simulation des Abbremsprozesses wurde für verschiedene Startbedingungen der HCI-Pakete simuliert. Allen gemein war die Annahme einer anfänglichen, gaußschen Energieverteilung mit den selben Parametern  $Qe\bar{V}_{extr} = 680 \text{ eV}/Q$  und  $QeV_\sigma = 10.6 \text{ eV}/Q$ , die auch für das theoretische Modell verwendet wurden. Zusätzlich wurden die Schaltzeitpunkte stets so gewählt, dass die mittlere kinetische Energie nach dem Abbremsen  $Qe\bar{V}_f = 130 \text{ eV}/Q$  betrug. Am Ende des Simulationsvorgangs wurde die mittlere kinetische Energie aller, durch die zweite Einzellinse (E2) transferierten und beim Ionendetektor (BD1) ankommenden, HCIs registriert und bezüglich  $p_{max}$  ausgewertet. Tabelle 2.1 fasst die Ergebnisse für verschiedene sonstige Startbedingungen, wie transversale Ausdehnung des Ionenpaketes, transversaler Divergenzwinkel, Berücksichtigung von Raumladungseffekten, zusammen.

Ob alle 5000  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen auf der Symmetrieachse geflogen oder homogen auf einen coaxialen Kreis mit Durchmesser 6.5 mm verteilt werden liefert beides Mal  $p_{max} = 97\%$  für den prozentualen Anteil an abgebremsten HCIs mit Energien im Intervall von  $13 \times 130 \text{ eV} \pm 5 \text{ eV}$ , in guter Übereinstimmung mit dem theoretischen Modell. Bei zusätzlicher Annahme einer kegelförmigen Divergenzverteilung mit, maximal experimentell zu erwartendem, Öffnungswinkel von  $0.1^\circ$  tritt eine leichte Re-

	Startbedingungen	# HCI mit $E_{kin} \in 13 \times 130 \text{ eV} \pm 5 \text{ eV}$
Theoretisches Modell	$V_{PDT1} = 474.1 \text{ V}$	100 %
SIMION Run 1	$V_{PDT1} = 470 \text{ V}, \theta = 0^\circ,$ $d = 0 \text{ mm}, \text{SC: aus}$	97 %
SIMION Run 2	$V_{PDT1} = 470 \text{ V}, \theta = 0^\circ,$ $d = 6.5 \text{ mm}, \text{SC: aus}$	97 %
SIMION Run 3	$V_{PDT1} = 470 \text{ V}, \theta = 0.1^\circ,$ $d = 6.5 \text{ mm}, \text{SC: aus}$	96 %
SIMION Run 4	$V_{PDT1} = 470 \text{ V}, \theta = 0.1^\circ,$ $d = 6 \text{ mm}, \text{SC: } 2 \times 10^{-15} \text{ C}$	89 %
SIMION Run 5	$V_{PDT1} = 470 \text{ V}, \theta = 0.1^\circ,$ $d = 6 \text{ mm}, \text{SC: } 2 \times 10^{-14} \text{ C}$	26 %
SIMION Run 6	$V_{PDT1} = 550 \text{ V}, \theta = 0.1^\circ,$ $d = 6 \text{ mm}, \text{SC: } 2 \times 10^{-14} \text{ C}$	0.4 %

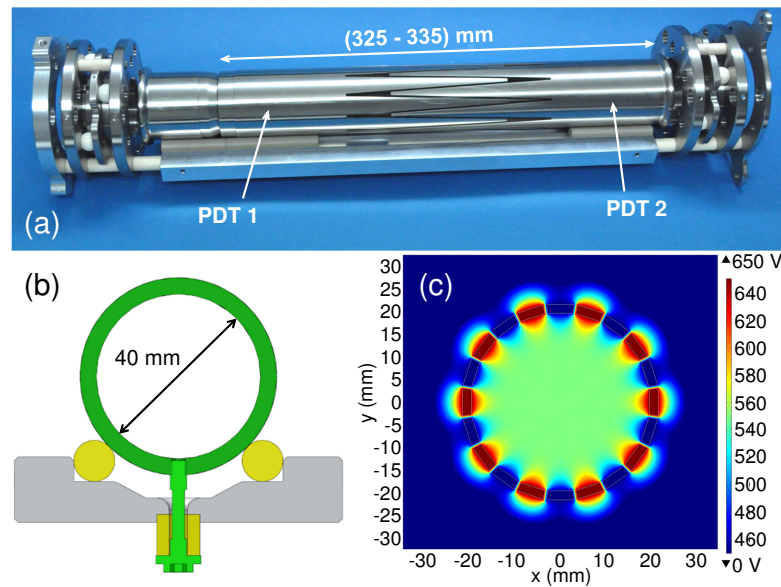
**Tabelle 2.1:** Ergebnisse exemplarischer SIMION-Simulationen im Vergleich mit dem vorgestellten 1-dim. theoretischen Modell.  $\theta$  bezeichnet den transversalen Divergenzwinkel der HCIs (damit ist  $\theta$  der halbe Öffnungswinkel der Kegelverteilung der vektoriellen Startgeschwindigkeiten),  $d$  den Durchmesser für die transversale Kreisverteilung der HCIs in der Extraktionsebene und SC steht für die Anzahl der pro Puls vorhandenen  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, für die Fälle bei denen Raumladungseffekte bei der Simulation berücksichtigt wurden. So entspräche z.B. SC:  $2 \times 10^{-15} \text{ C}$  einem HCI-Paket mit  $1 \times 10^3 \text{ Ar}^{13+}$ -Ionen. SIMION Run 1-4 mit je 5000 und Run 5-6 mit je 500  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen simuliert.



duktion auf 96 % auf. Wesentliche quantitative Unterschiede zum theoretischen Modell ergeben sich erst bei der Berücksichtigung von Raumladungseffekten innerhalb des HCI-Paketes mit deutlich mehr als 100 angenommenen  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen. So reduziert sich  $p_{max}$  für angenommene  $1 \times 10^3$   $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen pro Puls auf 89 %. Für  $1 \times 10^4$   $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen pro Puls erhält man eine deutliche Reduktion auf 26 %. Dieser Wert ist jedoch im Vergleich zu dem Simulations-Ergebnis für das Abbremsen ohne Vorkühlen von 0.4 % zu sehen. Für das Abbremsen mit Vorkühlen kann der Prozentsatz  $p_{max}$  zusätzlich durch Verwendung der Einzellinse (E1) auf 48 % erhöht werden, was für den Fall ohne Vorkühlen keine Verbesserung bringt, da es hier zu Ionenbahnen kommt, die innerhalb der Elektroden enden und selbige nicht mehr (BD1) bzw. die Paulfalle erreichen würden.

### 2.3.4 Pulsed Buncher Tube - Design

Die beiden gezackten Elektroden werden durch Drahterosion aus Edelstahl-Hohlzylindern hergestellt und, wie in Abbildung 2.14 a) und b) zu sehen, auf je zwei PEEK Isolatorstäben auf einer gemeinsamen Aluminium Grundplatte montiert. Die beiden gezackten Elektroden werden dabei innerhalb von Toleranzen kleiner als 50  $\mu\text{m}$  coaxial gelagert. Die Isolatorstäbe sind im 90° Winkel tangential



**Abbildung 2.14:** a) Foto der zwei gezackten Abbrems Elektroden (PDT1 und PDT2), zusammen mit den beiden benachbarten Einzellinsen. b) Montage-Konzept der gezackten Elektroden auf der geerdeten Grundplatte. c) FEM-Simulation des Abbremspotentials in der Schnittebene, die senkrecht zur Symmetrieachse der Elektroden steht und den Mittelpunkt des Überlappungsbereichs enthält. Entnommen aus der, während dieser Promotionsforschung, erstellten Veröffentlichung [200].

an den Umfang der Elektroden angelagert, um maximale Kraftableitung und damit Stabilität zu gewährleisten. Das Montage-Konzept verhindert, dass sich die Isolatoren in Sichtlinie der HCI-Pakete befinden und somit aufgeladen werden könnten. Für die Anpassung des Designs der Abbremsseinheit an die gegebenen experimentellen Bedingungen (Emittanz der EBIT, Energieverteilung der extrahierten HCI-Pakete, Akzeptanz der Paulfalle, geeignete Energieverteilung für sympathetisches Stoppen), sind folgende Größen von Bedeutung: die Anzahl der Zacken, die Gesamtlänge der Abbremsseinheit, der Innendurchmesser der Elektroden, die Länge des linear ansteigenden Abbremspotentials. Letzteres wird durch die zu erwartende Positionsverteilung der HCIs eines extrahierten Pulses innerhalb des Überlappungsbereichs der gezackten Elektroden festgelegt (vergleiche hierzu Abbildung 2.11 d)-f)). Der Innendurchmesser der Elektroden wurde auf 40 mm festgesetzt. Dies ist das Ergebnis eines Kompromisses aus Verringerung ionenoptischer Aberrationen, Maximierung des effektiven Innendurchmessers, der zum verlustfreien (in Bezug auf die kinetische Energie) Abbremsen mit Vorkühlen der HCIs führt und Minimierung der Gesamtlänge der Abbremsseinheit. Die Gesamtlänge ist mit dem Innendurchmesser durch das Eindringen elektrischer Felder benachbarter Elektroden in die gezackten Elektroden korreliert. Der effektiv zum Abbremsen nutzbare Innendurchmesser der Abbrems Elektroden wird, bei konstantem geometrischem Innendurchmesser, mit zunehmender Anzahl an Zacken größer. Allerdings wird die Elektrode für eine größere Anzahl an Zacken zunehmend schwieriger herzustellen, so dass hier eine Anzahl von 10 gewählt wurde.

Im Prinzip wäre die Erzeugung eines linear ansteigenden Abbremspotentials auch durch Hintereinanderschalten zweier Hohlzylinder-Elektroden auf verschiedenen hohen Potentialen möglich. Dabei könnte der Abstand zwischen den beiden Hohlzylinder-Elektroden, im Vergleich zu den zu erwartenden Positionsverteilungen und einem realistischen Innendurchmesser der Elektroden, aufgrund des Felddurchgriffs zur geerdeten Vakuumkammer und damit verbundenen Störungen des Potentialverlaufs, nur viel zu klein gewählt werden. Eine weitere Design-Alternative zur Erzeugung eines beliebig ansteigenden Abbremspotentials bestünde in der Hintereinanderschaltung mehrerer Elektroden in Kreisscheiben-Form, mit kleinen Abständen ( $\approx 1$  mm) zwischen den Elektroden. Dies würde jedoch zu einer wesentlich komplexeren Elektronik-Schaltung zum gleichzeitigen Herunterpulsen aller Elektroden führen.

### 2.3.5 Abbrems- und Vorkühlmessungen

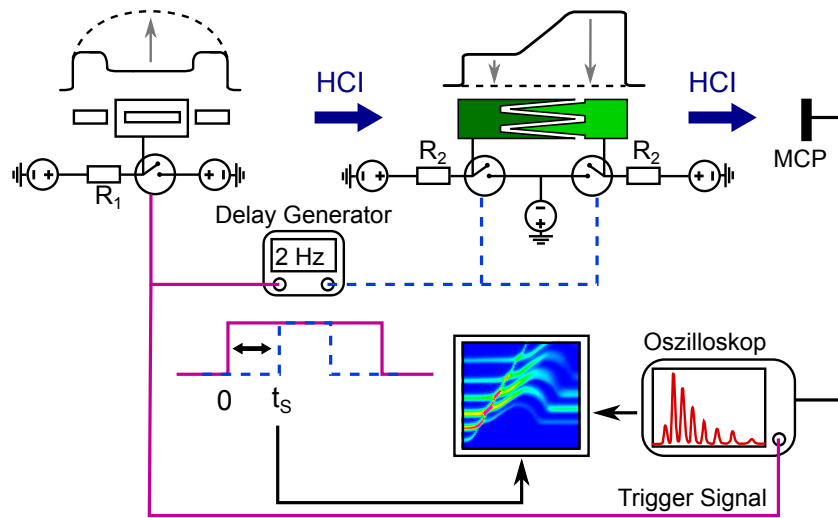
Die experimentelle Bestimmung geeigneter Schaltzeitpunkte aller gepulsten Elektroden erfolgt mittels Auswertung der Ionendetektorsignale (BD1) und (BD2) in Abhängigkeit der eingestellten Spannungen und Schaltzeiten. Im Folgenden wird das Vorgehen an Hand der Bestimmung von  $t_S$  für das Abbremsen von HCI-Paketen vorgestellt.

Ausgangspunkt aller Trigger-Signale für das Schalten der Elektroden Spannungen ist ein Delay-Generator. Hier legt das Aussenden des Trigger-Signals, zum Extrahieren der HCI-Pakete aus der EBIT, den Nullpunkt der Zeitachse fest. Für alle übrigen Trigger-Signale können variable Verzögerungszeiten zum Aussenden dieses ers-

ten TTL-Signals eingestellt werden. In Abbildung 2.15 zum Datenaufnahmesystem, das zur experimentellen Bestimmung (oder Überprüfung) geeigneter Schaltzeitpunkte verwendet wird, sind beispielhaft das Start-Trigger-Signal, sowie dasjenige zum gleichzeitigen Herunterpulsen der beiden gezackten Elektroden, zu sehen.

Für die Aufnahme eines so genannten Abbrems-Scans werden vom Delay-Generator zwei TTL-Signale erzeugt. Das eine (magentafarbene, durchgezogene Linie) legt den Extraktionszeitpunkt der HCI-Pakete aus der EBIT fest, indem es das schnelle Anlegen eines HV-Pulses an die mittlere Fallenelektrode der EBIT auslöst. Des Weiteren wird dieses TTL-Signal als Trigger-Signal für ein Oszilloskop, welches der Aufnahme von Flugzeitspektren der HCI-Pakete dient, verwendet. Das zweite TTL-Signal (blaue, gestrichelte Linie) wird nach einer, variabel einstellbaren, Zeit  $t_S$  nach dem ersten Signal ausgesandt und bewirkt das gleichzeitige Schalten der Abbremsspannungen beider gezackten Elektroden.

Die schrittweise Erhöhung der Verzögerungszeit  $t_S$  zwischen den beiden Trigger-Signalen, mit einer typischen Schrittgröße von 50 ns, ermöglicht, zusammen mit der Aufnahme eines Flugzeitspektrums extrahierter HCI-Pulse pro Schritt, die Beobachtung der Flugzeitveränderungen eines HCI-Paketes mit spezifischem Ladungszustand während der verschiedenen Phasen des Abbrems-Prozesses. Für die Implantation von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen in einen lasergekühlten  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall wird vorher genau dieses HCI-Paket nach der Extraktion selektiert. Die in den Abbildungen 2.16 bzw. 2.17 gezeigten Abbrems-Scans wurden ohne Ladungszustandsselektion aufgenommen und enthalten daher mehrere Flugzeit-Peaks mit verschiedenen  $Q/M$ -Verhältnissen. Zum

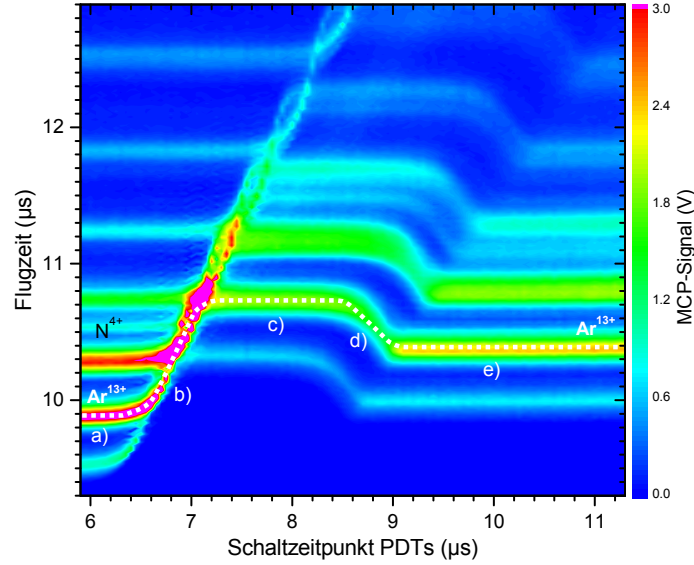


**Abbildung 2.15:** Datenaufnahmesystem, das zur experimentellen Bestimmung (oder Überprüfung) geeigneter Schaltzeitpunkte  $t_S$  sowie zur Charakterisierung der Abbremsseinheit verwendet wird. Das Schalter-Symbol steht hier je für schnelle Behlke-Schalter. Die elektronische Schaltung zum simultanen Herunterpulsen der beiden Abbrems Elektroden ist stark vereinfacht, eine genauere Darstellung findet sich in [206]. Entnommen aus der, während dieser Promotionsforschung, erstellten Veröffentlichung [200].

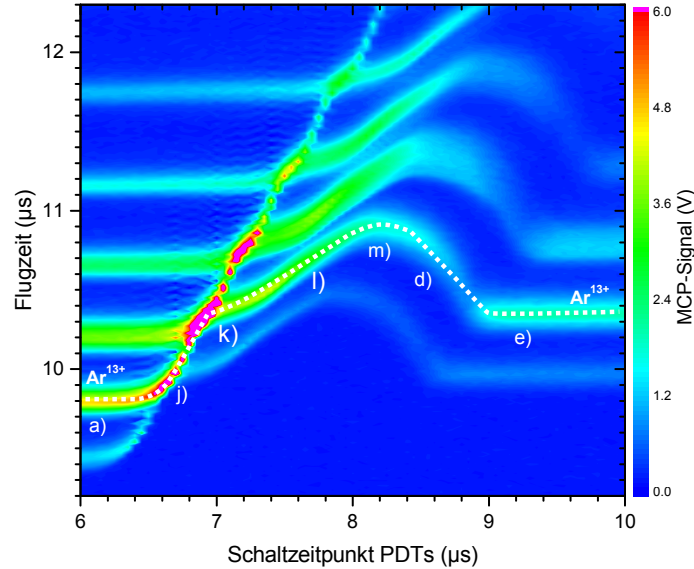
Verständnis der Scans ist es hilfreich sich abermals den, auf den Seiten 114 und folgende, diskutierten Sachverhalt vor Augen zu führen, dass der Schaltzeitpunkt  $t_S$  einer bestimmten Wegstrecke entspricht, die das  $i$ -te HCI in einem Puls mit einheitlichem  $Q/M$ -Verhältnis seit der Extraktion zurück gelegt hat. Diese Wegstrecke entspricht dann wiederum einem spezifischen Abbremspotential, welches das  $i$ -te HCI zum gemeinsamen Schaltzeitpunkt  $t_S$  erfahren hat.

Für die in den Abbildungen 2.16 bzw. 2.17 präsentierten Abbrems-Scans, wurde der Schaltzeitpunkt schrittweise erhöht und bei jedem Schritt ein Flugzeitspektrum der extrahierten Ionenpakete, je gemittelt über 64 Extraktionszyklen bei einer Extraktionsfrequenz von 2 Hz, aufgenommen für ein Abbremsen ohne ( $V_{PDT1} = V_{PDT2}$ ) bzw. mit ( $V_{PDT1} < V_{PDT2}$ ) Vorkühlen. Da die, bei dem verwendeten gepulsten Extraktionsmodus, longitudinale mittlere kinetische Energie eines Ionenpulses direkt proportional zum Ladungszustand der HCIs ist, legen die Ionen eine feste Wegstrecke umso schneller zurück, je höher ihr Ladungszustand ist. Damit treffen HCI-Pakete, bestehend aus höher geladenen Ar-Ionen früher am Ionendetektor an, wenn kein Abbrems-Prozess stattfindet. Die weiße gestrichelte Linie in den beiden Abbildungen 2.16 und 2.17 beschreibt die Veränderung der mit (BD1) gemessenen Flugzeit extrahierter  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpakete in Abhängigkeit des eingestellten Schaltzeitpunktes. Der mit a) markierte  $t_S$ -Bereich konstanter Flugzeit entspricht bei beiden Abbrems-Scans dem Fall, dass die beiden gezackten Elektroden bereits auf Erdpotential herunter gepulst wurden, bevor die  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpakete das durch PDT1 geformte Abbremspotential erreicht haben. Für größere Werte von  $t_S$  (Bereich b)) wurden die  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen durch das Abbremspotential stärker und stärker abgebremst, bis sie sich zum Schaltzeitpunkt entweder im Bereich konstanten Abbremspotentials (c) in Abb. 2.16) für den Fall  $V_{PDT1} = V_{PDT2}$  befinden oder in den Bereich des linear ansteigenden Abbremspotentials (k) und l) in Abb. 2.17) für den Fall  $V_{PDT1} < V_{PDT2}$  eintreten. m) markiert bei dem Abbrems-Scan mit Vorkühlen, den Zeitpunkt, zu dem die  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpakete den gezackten Überlappungs-Bereich der beiden Abbrems Elektroden gerade verlassen. In dem  $t_S$ -Bereich d) der beiden Abbildungen verlassen die HCI-Pakete zum Schaltzeitpunkt die Elektrode PDT2, so dass sie teilweise wieder beschleunigt wurden. Dies ist mit einer, im Vergleich zu den Abschnitten c) in Abb. 2.16 bzw. m) in Abb. 2.17, verkürzten mittleren Flugzeit verbunden. Für Schaltzeitpunkte der Region d) beider Abbildungen werden die beiden gezackten Elektroden erst herunter gepulst, wenn die HCI-Pakete die Abbremsseinheit bereits verlassen und somit nur ein elektrostatisches Potential durchflogen haben. Hier bleibt die mittlere kinetische Energie der HCI-Pakete zwar unverändert, ihre mittlere Flugzeit ist jedoch im Vergleich zum Bereich a) beider Abbildungen deutlich größer. Dies ist durch die langsamere Geschwindigkeit, mit der die  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpakete die beiden, auf positiver Spannung liegenden, Abbrems Elektroden durchfliegen, bedingt.

Wie die Daten der Abbildungen 2.16 und 2.17 demonstrieren, kann ein Abbrems-Scan auch zur Überprüfung und Sichtbarmachung des, durch Anlegen der Spannungen  $V_{PDT1}$  und  $V_{PDT2}$  an die beiden gezackten Elektroden, erzeugten Abbremspotentials genutzt werden. Des Weiteren liefern sie, für das Abbremsen mit Vorkühlung, geeignete Bereiche des Schaltzeitpunktes  $t_S$ . Die Feineinstellung von  $t_S$  erfolgt an-



**Abbildung 2.16:** Beispielhafter Abbrems-Scan (Flugzeitspektren in Abhängigkeit des Schaltzeitpunktes) ohne Vorkühlen für, aus der EBIT extrahierte, HCI-Pakete. In den jeweiligen Flugzeitspektren erkennt man die Argonionen-Pulse mit Ladungszuständen von 14 bis 8. Die weiße, gestrichelte Linie folgt der mittleren Flugzeit des  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpaketes. HCI-Pakete werden mit einer mittleren kinetischen Energie von  $Qe\bar{V}_{extr} = 685 \text{ eV}/Q$  extrahiert und mittels  $V_{PDT1} = V_{PDT2} = 300 \text{ V}$  abgebremst. Die Markierungen a) bis e) markieren die unterschiedlichen Phasen des Abbrems-Scans wie im Text erläutert. Flugzeitspektren über 64 Extraktionszyklen gemittelt. Entnommen aus der, während dieser Promotionsforschung, erstellten Veröffentlichung [200].



**Abbildung 2.17:** Beispielhafter Abbrems-Scan mit Vorkühlen für, aus der EBIT extrahierte, HCI-Pakete. In den jeweiligen Flugzeitspektren erkennt man die Argonionen-Pulse mit Ladungszuständen von 14 bis 9. Die weiße, gestrichelte Linie folgt der mittleren Flugzeit des  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpaketes. HCI-Pakete werden mit einer mittleren kinetischen Energie von  $Qe\bar{V}_{extr} = 695 \text{ eV}/Q$  extrahiert und mittels  $V_{PDT1} = 200 \text{ V}$  und  $V_{PDT2} = 400 \text{ V}$  abgebremst. Flugzeitspektren über 64 Extraktionszyklen gemittelt. Entnommen aus der, während dieser Promotionsforschung, erstellten Veröffentlichung [200].

schließend über Messungen der Energieverteilung abgebremster HCI-Pakete mit Hilfe der Gegenfeldmethode (Verwendung von (BD1) als Retarding-Field-Analysator). Die Breite der farbigen Kurven aus den Abbrems-Scans entsprechen den zeitlichen Breiten der Flugzeitverteilungen eines HCI-Paketes, nach Abbremsen zu einem spezifischen gemeinsamen Schaltzeitpunkt. Diese zeitliche Breite ist ein Maß für die Breite der kinetischen Energieverteilung eines HCI-Paketes im Verhältnis zu seiner mittleren kinetischen Energie (vergleiche hierzu auch Kapitel A.1 Gleichung (A.13)). Betrachtet man die, zu  $\text{Ar}^{13+}$  gehörende, Kurve aus Abbildung 2.17, so erkennt man, dass die Flugzeitbreite für Schaltzeitpunkte im Bereich l) nicht größer ist als die im Bereich a), trotz der geringeren mittleren kinetischen Energie der  $\text{Ar}^{13+}$  Ionenpakete in Bereich l) im Vergleich zu Bereich a). Dies ist nur möglich, wenn es zu einer Verschmälerung der longitudinalen kinetischen Energieverteilung durch das Abbremsen mit Vorkühlen gekommen ist. Diese Beobachtung ist somit der Beleg für die Vorkühl-Fähigkeiten der vorgestellten Abbrems-Methode mit  $V_{PDT1} < V_{PDT2}$ .

Für eine quantitative Analyse der Verkleinerung der Energiebreite wurden die Breiten der Flugzeitverteilungen bei  $t_S = 6 \mu\text{s}$  und  $t_S = 7.6 \mu\text{s}$ , für die  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpakete aus Abb. 2.17, miteinander und mit den, nach dem 1-dim. theoretischen Modell zu erwartenden Flugzeitbreiten, verglichen. Es ergibt sich eine experimentell beobachtbare Reduktion der Energiebreite um einen Faktor 2. Diese Verschmälerung ist durch das theoretische Modell bei den gegebenen experimentellen Parametern zu erwarten. Die optimalen Vorkühl-Bedingungen, laut theoretischem Modell, wären für eine Kombination von  $695 \text{ eV}/Q$  als mittlerer kinetischer Extraktionsenergie und von  $395 \text{ eV}/Q$  als Zielwert für die mittlere kinetische Energie nach dem Abbremsen, durch Anlegen der Spannungen (237 V, 363 V) an die beiden gezackten Elektroden (PDT1, PDT2), zu erreichen gewesen.

Für die, im folgenden Kapitel 2.4 vorgestellte, Messreihe zum Retrapping von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpaketen in die lineare Paulfalle, wurden die  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpaketen auf eine mittlere kinetische Energie von  $Qe\bar{V}_f = 130.6 \text{ eV}/Q$ , unter Nutzung der Vorkühleigenschaften des Abbremsystems, verlangsamt. Die gemessene FWHM Breite der gaußförmigen Verteilung betrug  $7.1 \text{ eV}/Q$  ( $QeV_\sigma = 3 \text{ eV}/Q$ ). Dies entspricht, für gewählte Abbremsspannungen ( $V_{PDT1}, V_{PDT2}$ ) von (450 V, 650 V), einer Reduktion der longitudinalen kinetischen Energiebreite, im Vergleich zu unabgebremsten Ionenpaketen, um einen Faktor 3.5. Der Prozentsatz an HCIs mit Energien im Intervall ( $130 \text{ eV}/Q, 130 \text{ eV}/Q + 10 \text{ eV}$ ) betrug damit ca. 10 %, im Gegensatz zu den theoretisch zu erwartenden 0.4 % (vergleiche Tabelle 2.1, SIMION Run6) bis maximal 2 % (vergleiche Abbildung 2.12), wenn die HCI-Pakete ohne Vorkühlen abgebremst würden. Eine Analyse, nach der in [206] erläuterten Methode, der Fläche unter dem  $\text{Ar}^{13+}$ -Flugzeitpeak des Ionendetektorsignals, welche mit der HCI-Anzahl pro Puls verknüpft ist, lieferte einen Wert von  $1.3 \times 10^4$   $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen in den vorgekühlt und abgebremsten Paketen. Dies entspricht ungefähr der Hälfte der typischerweise für unabgebremste Pakete bestimmten Ionenanzahl. Die relative hohe Ionenanzahl legt die Vermutung nahe, dass der niedrigere Prozentsatz für ein Abbremsen ohne Vorkühlen Gültigkeit hat. Dies ist in Übereinstimmung mit der experimentellen Beobachtung, dass ein Retrapping bzw. eine Implantation von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen in der Paulfalle bzw.

in den  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall für, ohne Vorkühlen, abgebremste Ionenpakete nicht möglich war.

## 2.4 Retrapping von HCIs in einer linearen Paulfalle

Das erfolgreiche Wiedereinfangen, mit Speicherzeiten in der Größenordnung von ein paar 10 ms, der extrahierten  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpakete in der kryogenen, linearen Paulfalle stellt eine notwendige Voraussetzung für das Stoppen einzelner  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen durch und die Co-Kristallisation in einem kontinuierlich lasergekühlten  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall dar. Vor dem eigentlichen Implantationsprozess werden alle Elektroden-spannungen und -schaltzeiten experimentell so eingestellt, dass es möglich ist mehrere  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen (ohne die Anwesenheit eines  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalls) für mehrere 10 ms in der Paulfalle zu speichern. Die langen Retrapping-Zeiten erlauben dann in einem zweiten Schritt mehrfache Durchgänge einzelner  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen durch den  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall, was dessen effektives Bremsvermögen wesentlich erhöht. Damit erhöht sich auch die Wahrscheinlichkeit pro Extraktions-/Injektionszyklus ein oder mehrere  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen im  $\text{Be}^+$ -Kristall zu lokalisieren.

### 2.4.1 Retrapping-Konzept

Eine schematische Darstellung des Retrapping-Zyklus ist in Abbildung 2.18 zu sehen. Für sämtliche Phasen des Retrapping-Prozesses werden die Vor- und Hauptfallenelektroden der Paulfalle auf ein gemeinsames, elektrostatisches Abbremspotential gelegt. Die Höhe der angelegten Abbremsspannungen ist durch die restliche mittlere kinetische Energie  $Qe\bar{V}_f$  des, mit Vorkühlung abgebremsten, zu injizierenden HCI-Paketes gegeben. Diese wird mit dem Gegenfeld-Analysator des Ionendetektors (BD1) am Ende der Abbrems-Beamline gemessen. Hierbei ist zu beachten, dass aus technischen Gründen, die an die Paulfallen-Elektroden angelegten DC-Spannungen den Maximalwert von 200 V nicht überschreiten sollten. Gleichzeitig sollte  $\bar{V}_f$  nicht zu niedrig gewählt werden, da es innerhalb der Paulfallen-Vakuumkammer u.a. eine freie Flugstrecke von mehr als 200 mm gibt, was zu Ionenverlusten bei sehr langsamen Teilchen führen kann. Typischerweise werden die Paulfallenelektroden auf ca. 130 V gelegt.

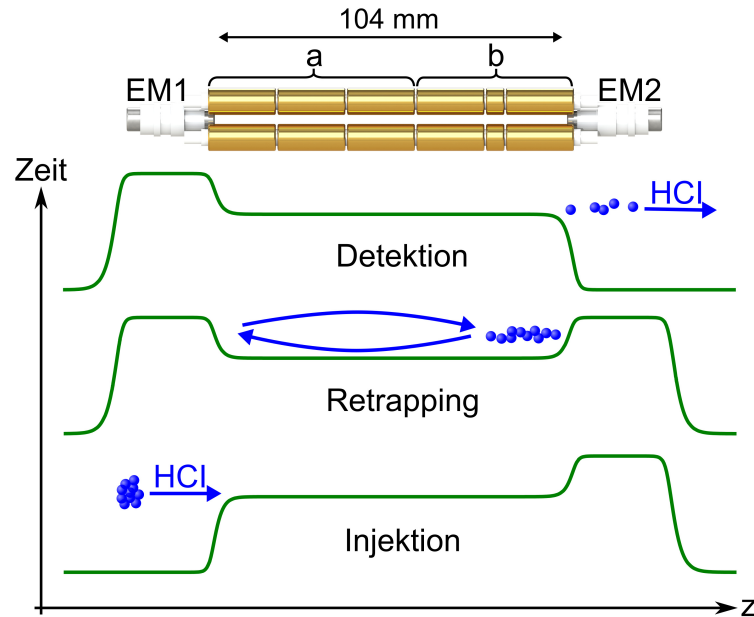
Entscheidende Komponenten für das Wiedereinfangen der HCI-Pakete in die lineare Paulfalle sind die beiden, coaxial zu der zylindersymmetrischen Elektrodenkonfiguration der Paulfalle angeordneten, elektrostatischen Spiegel. Diese ragen auf beiden Seiten leicht in die Paulfalle hinein, haben einen Innendurchmesser von 3 mm und eine Länge von 26 mm.

In der Injektions-Phase des Retrapping-Prozesses wird der, aus Sicht der ankommenden HCI-Pakete, erste elektrostatische Spiegel (EM1 in Abb. 2.18) für ein kurzes Zeitfenster auf 0 V gesetzt, während der zweite elektrostatische Spiegel (EM2 in Abb. 2.18) typischerweise auf 200 V gelegt wird. Damit können die vorher abgebremsten Ionenpakete gerade das, durch das Hochlegen sämtlicher Paulfallenelektroden erzeugte, Abbremspotential überwinden. Anschließend bewegen sie sich axial mit geringen restlichen kinetischen Energien in der Größenordnung  $< 1 \text{ eV}/Q$ . Ihre Bewegungsrichtung wird am Ende der Paulfalle durch den zweiten elektrostatischen Spiegel umgekehrt. Bevor die langsamen HCIs die Paulfalle wieder verlassen könnten wird an den ersten elektrostatischen Spiegel ebenfalls eine Spannung von typisch



200 V angelegt. Damit ist die Falle geschlossen und die eigentliche Retrapping- bzw. Speicherphase hat begonnen. In dieser oszillieren die HCIs axial (analog zum axialen Einschluss von Ionen in der EBIT) in dem von EM1/2 und den Paulfallenelektroden geformten Einschlusspotential, während sie radial durch das Radiofrequenzfeld der Paulfalle gefangen sind. Die Falle kann nach einer variablen Verzögerungszeit, definiert im Vergleich zum Zeitpunkt des Schließens der Falle, durch schnelles Herunterpulsen von EM2 auf Erddpotential, geöffnet werden. In dieser Detektionsphase, verlassen die gespeicherten HCIs die Paulfalle dann axial und treffen nach fester Wegstrecke auf den Ionendetektor (BD2) hinter der Paulfalle. Die einstellbare Verzögerungszeit entspricht damit der Speicherzeit der wieder eingefangenen HCIs. Die Detektionsphase ermöglicht Nachweis und Optimierung des Retrapping-Prozesses, sowie die Bestimmung von HCI Retrapping-Zeiten.

Die Anzahl an HCIs, die durch das Retrapping in der Paulfalle gespeichert sind, hängt entscheidend von allen Elektroden-Spannungen, Spulen-Stromstärken und Schaltzeitpunkten aller gepulsten Elektroden ab. Die verbleibende Energiebreite im HCI-Paket führt, zusammen mit den geringen kinetischen Energien von  $< 10$  eV, zu einer relativ großen zeitlichen und longitudinal räumlichen Breite des HCI-Paketes

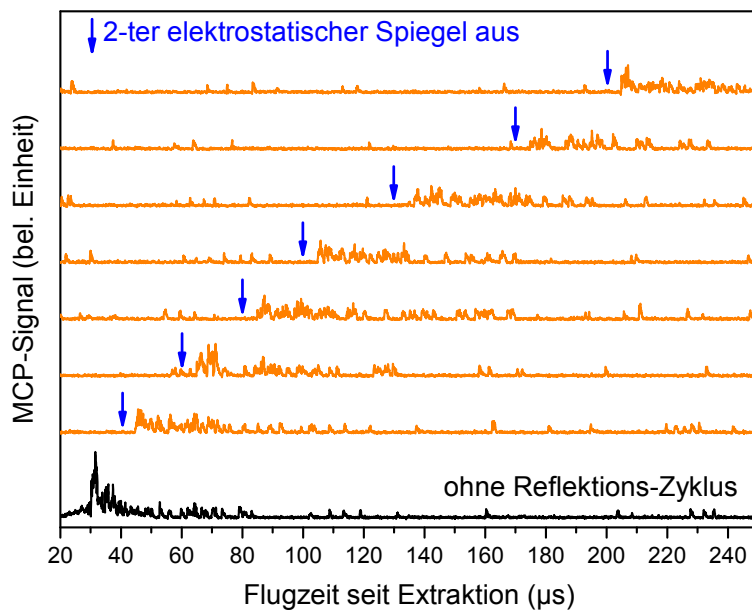


**Abbildung 2.18:** Oben: CAD-Modell der Retrapping-Elektroden des Ionen-Resonators: EM1 und 2 sind die beiden hohlzylinderförmigen Elektroden mit Innendurchmesser 3 mm, die als elektrostatische Spiegel verwendet werden. (a) und (b) bezeichnen die Vor- und Hauptfallen-Elektroden der Paulfalle, die auf ein gemeinsames elektrostatisches Abbremspotential in der Größenordnung 130 V hochgelegt werden. Damit erhält man ein  $140 \text{ mm} \times 28 \text{ mm}^2$  großes Volumen für das Wiedereinfangen der HCI-Pakete in der Paulfalle. Unten: Mittels SIMION simulierte Potentialkurven, entlang der Symmetrieachse der Falle, für die verschiedenen Phasen eines Retrapping-Zyklus. Letzterer besteht (von unten nach oben) aus Injektions-, Retrapping- und Detektions-Phase. Teilweise entnommen aus der, während dieser Promotionsforschung, erstellten Veröffentlichung [200].

innerhalb der Paulfalle. Dies führt, zusammen mit Ionenverlusten auf dem Weg zwischen Paulfalle und Ionendetektor (BD2), zur Detektion von Einzelionen-Pulsen mit (BD2), wie schematisch in Abb. 2.18 illustriert und durch Retrapping-Messreihen (Abb. 2.19) bestätigt.

### 2.4.2 $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen Retrapping-Nachweis

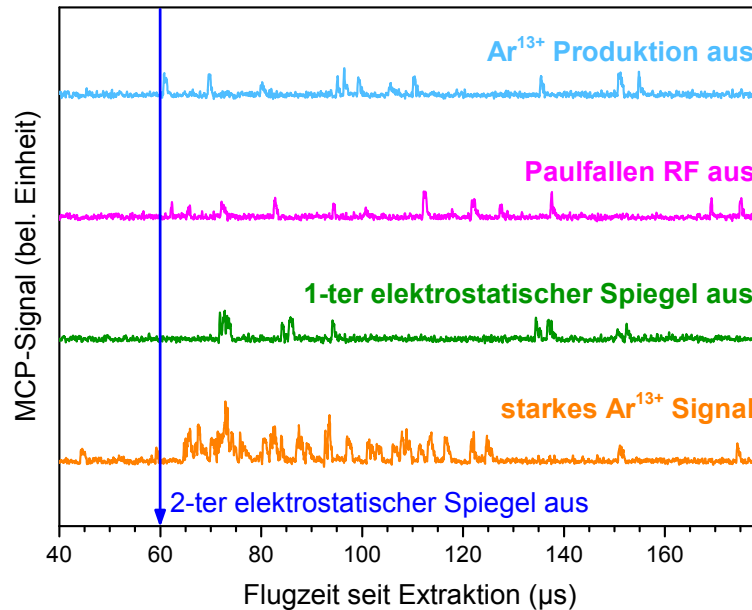
Beginn einer typischen Retrapping-Messreihe, wie in Abbildung 2.19 gezeigt, ist die Aufnahme eines Flugzeitspektrums des  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpaketes mit (BD2) ohne Reflektions-Zyklen. Hierfür werden sämtliche Paulfallenelektroden auf einen gemeinsamen Abbrems-Spannungswert (hier: 130 V) gelegt, während die beiden elektrostatischen Spiegel auf Erdpotential gehalten werden. In dem Beispiel aus Abb. 2.19 kommen die schnellsten  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen 29.2  $\mu\text{s}$  nach Extraktion aus der EBIT am Detektor (BD2) nach der Paulfalle an. Zeitlich dehnt sich das Paket über ca. 56  $\mu\text{s}$  aus. Dieser Wert ist ungefähr 28-mal so groß wie die zeitliche Ausbreitung eines am Ionendetektor (BD2) ankommenden  $\text{Ar}^{13+}$ -Paketes, das durch die Paulfalle fliegt, wenn alle Paulfallen-Elektroden auf 0 V liegen. Dies ist durch die verstärkte Dispersion des HCI-Paketes innerhalb der Paulfalle, mit allen Elektroden auf 130 V, zu erklären.



**Abbildung 2.19:** Exemplarische Messreihe zum Wiedereinfangen von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpaketen in einer linearen Paulfalle, die ganz unten mit einer Referenz-Messung ohne Reflektions-Zyklus (schwarze Kurve) beginnt. Dargestellt ist jeweils das Ionendetektor-Signal detektierter  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen in Abhängigkeit der Flugzeit, seit Extraktion aus der EBIT. Der Zeitpunkt, zu dem EM2 auf Erdpotential herunter gepulst wird und die HCIs die Paulfalle Richtung Ionendetektor (BD2) verlassen ist bei den orangefarbenen Kurven jeweils durch einen blauen Pfeil gekennzeichnet. Jede Oszilloskop-Spur wurde über 32 Retrapping-Zyklen gemittelt.

Anschließend wird der, in Abb. 2.18 schematisch illustrierte, Retrapping-Zyklus inklusive Detektions-Phase angewandt, wobei der Schaltzeitpunkt des zweiten elektrostatischen Spiegels schrittweise erhöht wird. Der Schaltzeitpunkt von EM2, bezogen auf den Extraktionszeitpunkt der HCI-Pakete aus der EBIT, ist in Abbildung 2.19 je durch blaue Pfeile markiert. Da EM2 nach dem Schaltzeitpunkt bis zu Beginn des nächsten Extraktions-Zyklus (Dauer: typ. 500 ms) auf Erdpotential liegt, erkennt man an den, orange eingefärbten, Detektorsignalen einen Zusammenhang zwischen schrittweise erhöhtem Schaltzeitpunkt und schrittweise, im Vergleich zur Messung ohne Reflektions-Zyklus, immer stärker verzögertem Auftreffen der  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen auf das MCP hinter der Paulfalle. Für EM2 Schaltzeiten größer als 100  $\mu\text{s}$  treten Detektorsignale in Bereichen auf, in denen bei einer Messung ohne Reflektions-Zyklus nur Untergrund-Signal zu erkennen ist. Ein erster Hinweis auf das erfolgreiche Retrapping von HCI-Paketen in der Paulfalle. Das in Abb. 2.19 für die orangefarbenen Detektorsignale beobachtbare Zeitfenster von 5  $\mu\text{s}$ , zwischen dem Freilassen der HCI's aus der Paulfalle (zeitliche Markierung durch blaue Pfeile) und dem Auftreffen selbiger auf den Detektor, passt zu der Kombination aus zurückzulegender Wegstrecke von EM2 bis zu (BD2) von 45 cm in Zusammenhang mit der minimalen kinetischen Energie von  $13 \times 130 \text{ eV}$  der  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen.

Für den eindeutigen Nachweis des erfolgreichen Retrappings von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen in



**Abbildung 2.20:** Exemplarische Messreihe zum eindeutigen Nachweis des Retrappings von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpaketen in einer linearen Paulfalle. Das orangefarbene Ionendetektorsignal ganz unten wurde bei vollständiger Anwendung des Retrapping-Zyklus aufgenommen. Hierbei wurde der 2-te elektrostatische Spiegel EM2 60  $\mu\text{s}$  nach Extraktion der HCI-Pakete aus der EBIT auf Erdpotential geschaltet. Für die Aufnahme der übrigen Ionendetektor-Signale wurde je ein Element des Retrapping-Verfahrens weggelassen. Jede Oszilloskop-Spur wurde über 32 Retrapping-Zyklen gemittelt.

der linearen Paulfalle wird eine zusätzliche, in Abbildung 2.20 zu sehende, Messreihe durchgeführt. Diese erfolgt bei einem festen Wert für den Schaltzeitpunkt von EM2, in Abb. 2.20 wird dabei eine beispielhafte Messreihe für eine Schaltzeit von 60  $\mu\text{s}$  gezeigt. Zunächst erfolgt die Aufnahme des Ionendetektor-Signals bei voller Anwendung aller Elemente des Retrapping-Zyklus. Anschließend werden Messungen durchgeführt, bei denen selektiv einzelne Komponenten des Retrapping-Zyklus weggelassen werden. Bei einer Aufnahme des MCP-Signals (grüne Oszilloskop-Spur) wird der erste elektrostatische Spiegel ausgeschaltet, d.h. kontinuierlich auf Erdpotential belassen, bei einer anderen Aufnahme (magentafarbene Oszilloskop-Spur) wird keine Radiofrequenzspannung an die Paulfallenelektroden angelegt. Schließlich wird noch das Detektor-Signal aufgenommen (blaue Oszilloskop-Spur), während die Produktion von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen in der EBIT ausgeschaltet wurde. Hierzu wird die Elektronenstrahl-Energie kleiner als das Ionisationspotential von  $\text{Ar}^{12+}$  gewählt, so dass physikalisch kein  $\text{Ar}^{13+}$  mehr durch Elektronenstoßionisation entstehen kann. Bei allen Vergleichsmessungen, bei denen ein Element des Retrapping-Zyklus ausgeschaltet wurde, konnte nur Untergrund-Signal detektiert werden, wohingegen bei Anwendung des kompletten Retrapping-Schemas ein starkes Ionensignal am Detektor beobachtet werden konnte. Dies ist gleichbedeutend mit dem zwischenzeitlichen Speichern von, aus der EBIT extrahierten,  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen in der linearen Paulfalle durch Applikation der vorgestellten Retrapping-Methode. Die Speicherzeit der  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen ist dabei näherungsweise gegeben durch die Zeitdifferenz zwischen der Ankunft der HCIs am Ionendetektor ohne Reflektions-Zyklus und dem Schaltzeitpunkt von EM2. Mit den gegebenen experimentellen Parametern konnten Speicherzeiten von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen bis zu 70 ms beobachtet werden.

### 2.4.3 Energie-Akzeptanz der linearen Paulfalle

Das kurzfristige Speichern hochgeladener Ionen, ohne Kühlung, in der linearen Paulfalle wird durch die Kombination aus axialem Einschluss durch das “Badewannen“-Potential, geformt durch die Differenz der an EM1/2 und die Paulfallenelektroden angelegten Spannungen, und dem radialen Einschluss der HCIs durch das RF-Feld der Paulfalle realisiert. Für die, im nächsten Abschnitt diskutierten, beispielhaften Retrapping-Messreihen wurde CryPTEx in der Elektronikvariante A mit einer Radiofrequenz  $f_{RF} = \Omega_{RF}/(2\pi)$  von 3.92 MHz betrieben. Die angelegte RF-Spannung hatte eine doppelte Amplitude (peak-to-peak) von  $V_{RF} = 46 \text{ V}$ . Dies ist gleichbedeutend mit einem typischen radialen Mathieu-Stabilitätsparameter  $q_r = 2QV_{RF}/(M\Omega_{RF}^2 r_0^2)$  von  $q_r = 0.39$ , wobei der minimale Abstand zwischen Paulfallenelektroden und Fallenachse bei CryPTEx durch  $r_0 = 3.5 \text{ mm}$  gegeben ist. Unter Annahme einer harmonischen Oszillationsbewegung in radialer Richtung mit einer radialen Fallenfrequenz, gegeben durch  $\omega_r = q_r \Omega_{RF}/(2\sqrt{2})$ , lässt sich mit

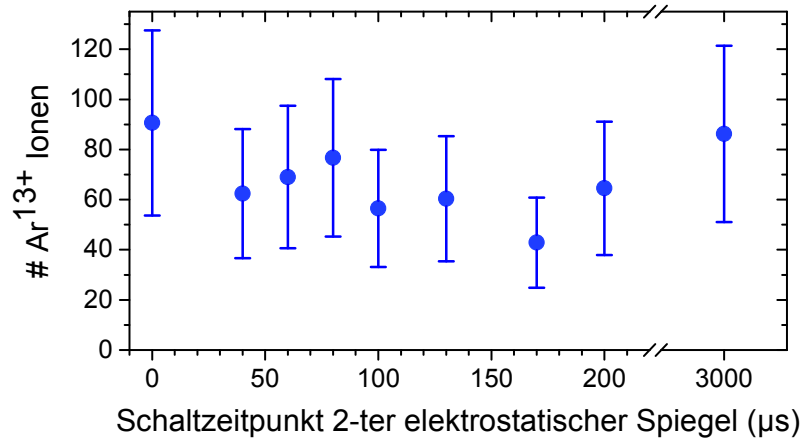
$$U_r = 0.5 M \omega_r^2 r_0^2 \quad (2.15)$$

eine obere Abschätzung für die Tiefe des  $Q^2/M$ -abhängigen radialen Einschluss-Potentials  $U_r$  geben.  $U_r$  kann für eine spezifische Ionensorte dann mit der radialen Energieakzeptanz der Paulfalle gleichgesetzt werden. Hierbei ist zu bedenken, dass

durch die Bewegung im RF-Feld anfänglich axiale Bewegungsenergie in transversale Bewegungsenergie umgewandelt werden kann, so dass  $U_r$  eine zusätzliche Limitierung für die longitudinale Energieakzeptanz der Paulfalle sein kann. Für die, im nächsten Abschnitt vorgestellten Retrapping-Messungen von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen ergibt sich ein Wert von 29 eV für die radiale Falltiefe. Axial werden langsame  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen (longitudinale, kinetische Energie  $< 10$  eV) von der 70 V großen Spannungsdifferenz zwischen EM1/2 und den Paulfallenelektroden reflektiert. Hierdurch ist die oberste longitudinale Energie-Akzeptanz der Paulfalle gegeben. Vergleiche hierzu auch die durchgeführten SIMION-Simulationen am Ende dieses Unterkapitels.

#### 2.4.4 Retrapping-Effizienz

Zur Bestimmung der Effizienz des Retrapping-Prozesses kann die Anzahl der, in der linearen Paulfalle, gespeicherten  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen für verschieden lange Retrapping-Zeiten bestimmt werden. Diese Ionenanzahlen können miteinander und mit der Anzahl der, ohne Reflektions-Zyklus, den Detektor (BD2) erreichenden Ionen verglichen werden. Um typische Werte der Retrapping-Effizienz für den gegebenen experimentellen Aufbau zu bestimmen wurde beispielhaft die Messreihe aus Abbildung 2.19, zusammen mit einer Messung für viel längere Retrapping-Zeiten, hinsichtlich der mittels (BD2) detektierten  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenanzahl ausgewertet. Dafür wurde die mittlere Fläche unterhalb des MCP-Detektorsignals für Einzel-Ionen-Peaks bestimmt,



**Abbildung 2.21:** Anzahl der mit (BD2) detektierter  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen in Abhängigkeit des Schaltzeitpunktes von EM2. Dazu wurden die Ionendetektor-Signale der Messreihe aus Abbildung 2.19 bzgl. der Ionenanzahl ausgewertet. Der Datenpunkt bei 0 µs entspricht dabei der Referenz-Messung aus Abbildung 2.19, die ohne Retrapping-Zyklus aufgenommen wurde (Durchschuss durch die Paulfalle). Fehlerbalken entsprechen der Standardabweichung der Einzelionen-Signal Analyse. Ionenverluste auf dem Weg zwischen EM2 und (BD2) können mit dem vorhandenen experimentellen Aufbau nicht bestimmt werden und wurden daher bei der Datenauswertung nicht berücksichtigt. Diese liefert somit eine untere Abschätzung der Anzahl an Ionen, welche die Paulfalle durchfliegen bzw. durch diese eingefangen werden.

so dass anschließend die Anzahl detektierter Ionen in Signalen ohne Einzel-Ionen-Peak-Auflösung, unter der Annahme von Linearität, bestimmt werden konnte.

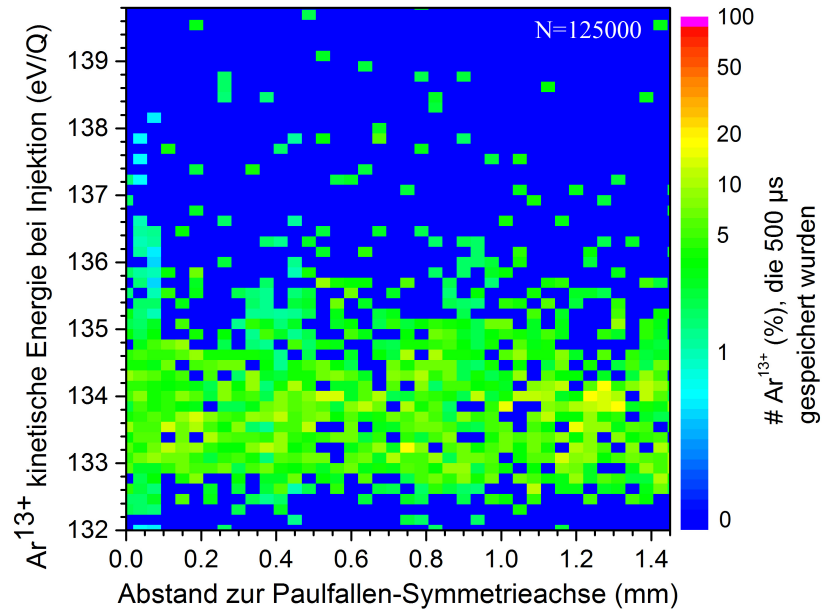
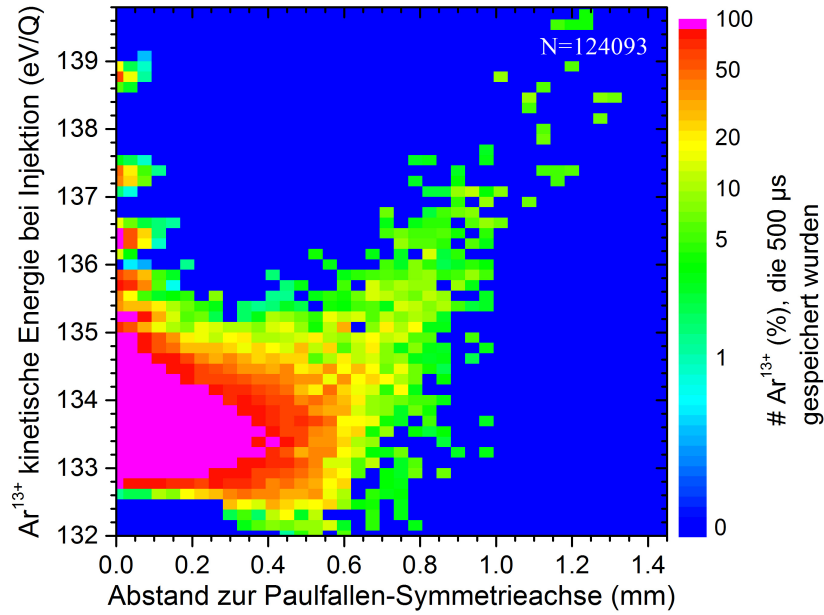
Für die Bestimmung der Fläche unter dem relevanten Teil des Ionendetektorsignals wurde für die Messung (schwarze Oszilloskop-Spur) ohne Reflektionszyklus ein Zeitfenster von  $56\text{ }\mu\text{s}$ , beginnend bei  $29.2\text{ }\mu\text{s}$ , gewählt. Das analysierte Zeitfenster für die Messungen mit Retrapping-Zyklus (orangefarbene Oszilloskop-Spuren) wurde  $90\text{ }\mu\text{s}$  lang gewählt, wobei der Startpunkt identisch zum Schaltzeitpunkt von EM2 (Position blauer Pfeile) gesetzt wurde. Zusätzlich wurden Mittelwert und Standardabweichung für die Fläche unter einem Einzel-Ionen-Peak, aus 40 Peaks außerhalb der gewählten Zeitfenster, bestimmt.

Die, in Abbildung 2.21 zusammengefassten, Ergebnisse der Auswertung liefern eine untere Abschätzung der absoluten Anzahl gespeicherter bzw. transmittierter  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, da Ionenverluste auf dem Weg zwischen Paulfalle und Detektor (BD2) nicht bestimmt werden konnten und somit für die Auswertung nicht berücksichtigt wurden. Ausgehend von ähnlichen Verlusten für transmittierte wie, nach einer gewissen Speicherzeit, wieder freigelassener HCIs können Ionenverluste auf dem Weg zum Detektor für die Bestimmung der Retrapping-Effizienz vernachlässigt werden. Die bestimmten  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenanzahlen für die acht Retrapping-Messungen sind, innerhalb der Fehlerbalken, konsistent mit keiner Abhängigkeit der Anzahl wieder eingefangener HCIs mit der Speicherzeit.

Die Effizienz des Retrapping-Prozesses konnte somit aus dem Verhältnis des Mittelwertes der Anzahl gespeicherter  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, für die acht Retrapping-Messungen, von 68(15) mit der typischen Anzahl, ohne Reflektions-Zyklus, transmittierter  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen von 91(37) zu 75(17) % bestimmt werden.

#### 2.4.5 SIMION-Simulationen des Retrapping-Prozesses

Zur Simulation des Retrapping-Prozesses (inklusive Mikrobewegung) wird ein CAD-Modell der relevanten Elektrodenkonfiguration, bestehend aus sämtlichen Paulfallenelektroden und den beiden elektrostatischen Spiegeln, zusammen mit einer umgebenden geerdeten Kammer, in die Umgebung der SIMION-Simulationssoftware importiert. Dort können über ein Skript-basiertes Benutzerprogramm, die Parameter (Frequenz und Spannungsamplitude) der RF-Spannung sowie die angelegte DC-Spannung individuell für jede Paulfallenelektrode eingestellt werden. Des Weiteren können die Spannungswerte, Schaltzeitpunkte und Zeitkonstanten für EM1 und 2 festgesetzt werden. Für die, in diesem Kapitel vorgestellten Simulationen wurden Parameter in der Nähe typischer experimenteller Werte verwendet: Eine RF-Spannung (peak-to-peak) von  $V_{RF} = 50\text{ V}$  bei einer RF-Frequenz von  $f_{RF} = 3.92\text{ MHz}$ , der erste elektrostatische Spiegel wird, mit einer Zeitkonstante von  $0.1\text{ }\mu\text{s}$  von Erdpotential auf  $220\text{ V}$  geschaltet, während der zweite elektrostatische Spiegel, mit der gleichen Zeitkonstanten wie EM1, von  $220\text{ V}$  auf Erdpotential, zu einem bestimmten Schaltzeitpunkt, herunter gepulst wird.  $U_{DC}$  der Hauptfalle wurde zu  $600\text{ mV}$  gewählt, dabei wurden die Mittelelektroden der Hauptfallenregion auf  $132.4\text{ V}$  gelegt, während alle übrigen Paulfallenelektroden auf  $133\text{ V}$  gesetzt wurden. Auch wenn, für die Simulation des Retrapping-Prozesses, prinzipiell alle Elektroden auf



das gleiche Abbremspotential gelegt werden könnten, wurde  $U_{DC} = SI600\text{mV}$  gewählt, um möglichst mit dem Experiment vergleichbare Ergebnisse zu erhalten, da hier der axiale Einschluss des Kühlionen-Kristalls für den anschließend erfolgenden Implantations-Prozess der HCIs, gewährleistet sein muss.

### Simulierte Akzeptanzen der linearen Paulfalle

Zur Bestimmung der geometrischen und energetischen Akzeptanzen der linearen Paulfalle, bzgl. der Injektion von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, wird der Prozentsatz an simulierten  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, die beispielhaft für  $500\mu\text{s}$  in der Paulfalle gespeichert wurden, in Abhängigkeit ihrer kinetischen longitudinalen Energie (keine transversale Geschwindigkeitskomponenten) vor Injektion in die Paulfalle, sowie in Abhängigkeit ihrer geometrischen Startbedingungen, bestimmt.

Abbildung 2.22 zeigt das Ergebnis solch einer Simulation, bei der für jeden Datenpunkt, bestehend aus kinetischer Injektionsenergie und Startposition, mindestens 50  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, mit zufälligen Phasen im Vergleich zum RF-Feld der Paulfalle, geflogen wurden. Die Intensitätsmatrix beruht auf einer Energie-Schrittweite von  $0.15\text{eV}/Q$  und einer Positions-Schrittweite von  $37.5\mu\text{m}$ . Wie in Abbildung 2.22 zu sehen ist, können 100 % der  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, mit Anfangsenergien zwischen  $133\text{eV}/Q$  und  $134\text{eV}/Q$ , die innerhalb eines Kreises mit Durchmesser  $450\mu\text{m}$  um die Paulfallen-Symmetrieachse und parallel zu selbiger, injiziert werden, für die getestete Retrapping-Zeit von  $500\mu\text{s}$  gespeichert werden. Die Anzahl speicherbarer  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, für den Startenergie-Bereich von  $133\text{eV}/Q$  bis  $134\text{eV}/Q$ , sinkt auf 5 %, wenn man von einem kollimierten, zentral injizierten HCI-Strahl mit Durchmesser  $1.3\text{mm}$  ausgeht.

Für die Simulation der Datenpaare aus Abbildung 2.23 wurden die Schrittweiten obiger Simulation beibehalten. Für jeden Punkt der Intensitätsmatrix wurden jedoch die geflogenen  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen mit verschiedenen Geschwindigkeitskomponenten in transversaler Richtung versehen, mit einer kegelförmigen Divergenz mit maximalem, halbem Öffnungswinkel von  $1^\circ$ . Für den Bereich von  $133\text{eV}/Q$  bis  $134\text{eV}/Q$  an Startenergien der simulierten  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, ergibt sich damit ein mittlerer Prozentsatz an speicherbaren  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen von 5(3) %. Die Datenpunkte der Intensitätsmatrix in dem speicherbaren Energiebereich bei denen 0 % der Ionen gespeichert werden können, könnten auf den Umstand zurück zu führen sein, dass bei dieser Simulation statistisch gesehen relativ wenige  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen pro Datenpunkt geflogen werden, da jetzt sowohl Startphase im Vergleich zum RF-Feld als auch der Divergenzwinkel der 50 Ionen variiert werden. Dies sollte an der allgemeinen Aussage des Diagramms nichts ändern. Beim Vergleich der Abbildungen 2.22 und 2.23 fällt auf, dass für, parallel zur Paulfallenachse injizierte HCIs, prinzipiell höhere Prozentsätze speicherbarer Ionen möglich sind, dafür mit Divergenzwinkeln injizierte  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen jedoch robuster gegen den Abstand des Injektionspunktes zur Paulfallen-Symmetrieachse sind. Für die Experimente ist eher von dem in Abb. 2.23 dargestellten Fall auszugehen, vermutlich mit geringerem Divergenzwinkel (es wurde für die Simulation der geometrisch maximal mögliche gewählt).

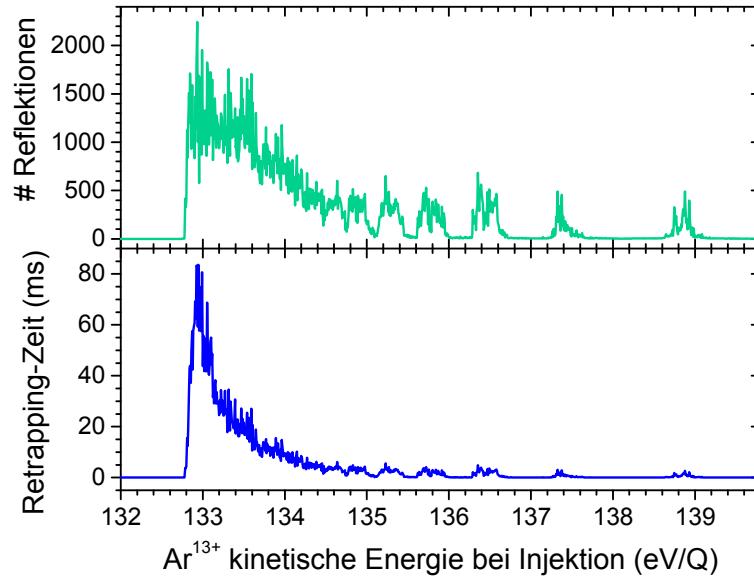
Für die verwendeten Simulationsparameter erhält man, nach Gleichung (2.15), für



$\text{Ar}^{13+}$  eine radiale Fallentiefe von 34 eV. Sollte dies auch die longitudinale kinetische Energie-Akzeptanz der Paulfalle limitieren, so dürften für Anfangsenergien oberhalb von  $135.6 \text{ eV}/Q$  keine  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen mehr gespeichert werden. Gemittelt über die Abstände der Startpositionen zur Paulfallen-Symmetrieachse (Kreis mit Innendurchmesser von ca. 3 mm und Mittelpunkt auf der Fallenachse) ist der simulierte Prozentsatz gespeicherter Ionen mit Divergenzwinkeln verschwindend gering. In Abbildung 2.22 sind jedoch, für Startpositionen mit Abstand zur Fallenachse kleiner als  $100 \mu\text{m}$ , zusätzliche Resonanzen bei höheren Anfangsenergien zu erkennen, wie im folgenden Abschnitt u.a. besprochen.

### Simulierte Retrapping-Zeiten ungekühlter $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen

Zusätzlich zu den, im vorherigen Abschnitt gezeigten, Simulationen des Retrapping-Prozesses wurde die Anzahl  $N_{RT}$  an Reflektionen gespeicherter, ungekühlter  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, zusammen mit den entsprechenden Retrapping-Zeiten, in Abhängigkeit ihrer rein longitudinalen kinetischen Anfangsenergie, simuliert. Die Parameter zur Erzeugung der elektrischen Felder wurden wie oben gewählt, die  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen mit zufälliger Phase, in Relation zum RF-Feld, entlang der Paulfallen-Symmetrieachse injiziert. Die Bewegungsbahn eines einzelnen  $\text{Ar}^{13+}$ -Ions wurde pro Energieschritt der Weite



**Abbildung 2.24:** Oben: SIMION-Simulation der Anzahl an Reflektionen zwischen den beiden elektrostatischen Spiegeln, für in der Paulfalle gespeicherte  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, in Abhängigkeit ihrer kinetischen Energie vor Injektion in die Paulfalle. Unten: Simulation der Speicherzeiten für  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen in Abhängigkeit ihrer Injektionsenergie, korrespondierend zur Anzahl an Reflektionen im oberen Diagramm. Simulationsparameter: Injektion der  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen entlang der Paulfallen-Symmetrieachse, alle Paulfallen-Elektroden sind auf 133 V hochgelegt, die Paulfalle wird mit einer RF-Spannung bzw. -Frequenz von  $V_{RF} = 50 \text{ V}$  bzw.  $\Omega_{RF}/2\pi = 3.29 \text{ MHz}$  betrieben ( $\omega_r(\text{Ar}^{13+})/2\pi = 585 \text{ kHz}$ ). Teilweise entnommen aus der, während dieser Promotionsforschung, erstellten Veröffentlichung [200].

0.1 eV simuliert. Die Flugzeit, seit Start der Ionenbewegung, wurde jedes Mal registriert, sobald das Ion die Ebene, senkrecht zur Fallachse und in der Mitte zwischen den beiden elektrostatischen Spiegeln, kreuzte. Die Anzahl der Einträge pro Ion (SIMION nummeriert die Ionen durch) ergeben somit die Anzahl der Reflektionen, während die Zeitdifferenz zwischen der ersten und letzten aufgezeichneten Flugzeit als Retrapping-Zeit  $t_{RT}$  festgelegt wurde. Die Ergebnisse dieser exemplarischen Simulation sind in Abbildung 2.24 zusammengefasst.

Die getrennt sichtbaren Peaks bei höheren Injektionsenergien, die für niedrigere Anfangsenergien in ein Kontinuum übergehen, könnten durch eine Stabilitätsbedingung der Ionentrajektorien unter Reflektions-Zyklen, erklärt werden. Für die Peak-Positionen lässt sich ein Modell aufstellen, bei dem der Abstand  $L$  zwischen den Umkehrpunkten der Ionenbewegung gerade halbzahlgigen Vielfachen der Wellenlänge  $\lambda = \pi v_{HCI}/\omega_r$ :  $L = n\lambda/2$ ,  $n \in \mathbb{N}$  entspricht, die den Pfad des Ions im Pseudopotential der Paulfalle beschreibt. Dabei ist  $v_{HCI} = \sqrt{2E_{HCI}/M}$  die longitudinale Geschwindigkeit der, mit Anfangsenergie  $E_{HCI}$  in die Paulfalle injizierten,  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen. Zusammenfassend gesagt, erkennt man in den simulierten Spektren der Retrapping-Zeit und Anzahl an Reflektionen, Resonanzen bei spezifischen Injektionsenergien, die durch die Bedingung

$$E_{HCI} = \frac{M\omega_r L^2}{2\pi^2 n^2} \quad (2.16)$$

beschrieben werden können. Da langsamere Ionen durch kleinere Reflektions-Potentiale zur Umkehr ihrer Bewegungsrichtung gezwungen werden können, erwartet man, dass die geometrische Distanz  $L$  von der Anfangsenergie der HCIs abhängt. Simulationen zeigen jedoch nur eine schwache Abhängigkeit, die in Gleichung (2.16) vernachlässigt wurde, der Distanz  $L$  von der Injektionsenergie. Für eine genauere Betrachtung der Resonanzbedingung, sowie zur Mikrobewegungs-bedingten Substruktur der Resonanz-Peaks sei auf [217] verwiesen.

Die Retrapping-Zeit  $t_{RT}$  eines  $\text{Ar}^{13+}$ -Ions, mit Anfangsenergie  $E_{HCI}$ , ist mit der Anzahl  $N$  an Reflektionen über die Energiedifferenz zwischen  $E_{HCI}$  und dem Energieäquivalent  $E_0 = QeV_{bias}$  des elektrostatischen Abbremspotentials  $V_{bias}$  der Paulfallenelektroden wie folgt verknüpft:

$$t_{RT} \propto N/\sqrt{E_{HCI} - E_0}. \quad (2.17)$$

Dies erklärt den steilen Anstieg an Speicherzeiten für, sich  $E_0 = QeV_{bias}$  nähernde Anfangsenergien, wie in Abbildung 2.24 unten deutlich zu erkennen ist.

Ein Vergleich zwischen den gemessenen Speicherzeiten ungekühlter  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen von bis zu 70 ms mit den, für ähnliche Bedingungen, simulierten Retrapping-Zeiten aus Abbildung 2.24, legt den Schluss nahe, dass die kinetischen Energien der experimentell gespeicherten  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen unterhalb von 10 eV für längeres Retrapping liegen.

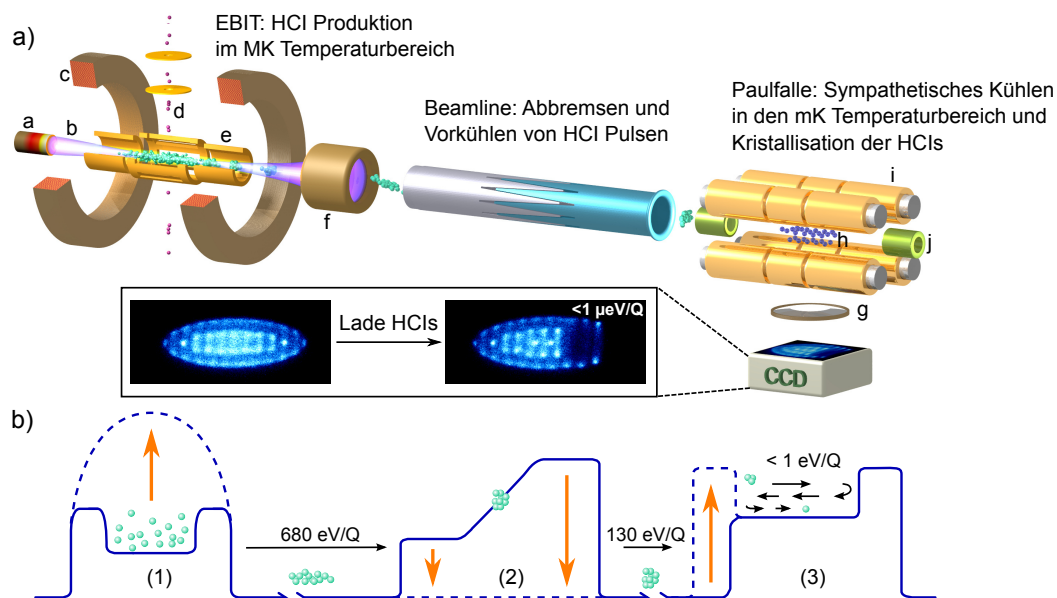
## 2.5 Zusammenfassung, typ. Energien und Effizienzen

Abbildung 2.25 a) und b) fasst das modulare Konzept zur Produktion kalter, in einem mikroskopischen Bereich einer Paulfalle, lokalisierter, hochgeladener Ionen zusammen. Ausgangspunkt ist die Separation des energetischen Produktions-Prozesses hochgeladener Ionen vom sympathetischen Kühlen in der Paulfalle, mittels einer Beamline mit Abbrems-, Vorkühl- und Retrapping-Eigenschaften. Abbildung 2.25 a) zeigt eine schematische Illustration der experimentellen Anordnung für die Präparation kalter HCIs, während in b) die entsprechenden notwendigen gepulsten Potentiale, ausgerichtet im Vergleich zu den jeweiligen Komponenten aus a), zu sehen sind.

Für die Implantation von HCIs in einen  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall werden, in einem ersten Schritt, alle Parameter von EBIT und Beamline so eingestellt und optimiert, dass die gewünschte Anzahl an HCIs (hier:  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen) für eine minimale, längere Zeit ungekühlt, d.h. ohne Anwesenheit von Kühl-Ionen, in der Paulfalle gespeichert werden können. Im nächsten Schritt wird ein  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall in der Hauptfalle von CryPTEx erzeugt und solange das, in Kapitel 2.4 vorgestellte, Retrapping-Schema angewandt, bis die gewünschte Anzahl an HCIs co-kristallisiert wurden. Die erfolgreiche Implantation einzelner HCIs kann durch das kontinuierliche Abbilden, mit Belichtungszeiten von typ. 1 s, des Fluoreszenzlichtes vom Kühlionen-Kristall auf die CCD-Kamera überwacht werden, wie in dem Einschub in Abb. 2.25 a) für die Implantation von zwei  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen zu sehen. Die Anwesenheit kristallisierter HCIs im Mischkristall kann durch das Auftreten dunkler, kreisförmiger Aussparungen im ansonsten hell leuchtenden Fluoreszenzbild des Kühlionen-Kristalls erkannt werden. Hat man die gewünschte Anzahl an HCIs injiziert und kristallisiert, wird die weitere Implantation von HCIs verhindert, indem eine Elektrode (z.B. eine der Elektroden von (D3) in Abb. 2.1) der Beamline schnell auf einen Spannungswert gebracht wird, der die Injektion von HCI-Paketen in die Paulfalle verhindert.

Im vorliegenden Experiment, konnte eine Co-Kristallisation von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen im Kühlionen-Coulomb-Kristall nur nach erfolgreich eingestellten Retrapping-Zeiten größer als 10 ms für ungekühlte  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen beobachtet werden. Die minimale beobachtete Anzahl an Kühlionen, die für das Stoppen und Co-Kristallisieren von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen im  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall ausreichend ist befindet sich in der Größenordnung von ein paar 10 bis 100  $\text{Be}^+$ -Ionen. Typische Implantationsraten für  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, für die hier vorgestellten Experimente, lagen zwischen  $1\text{ s}^{-1}$  und  $15\text{ s}^{-1}$ , so dass teilweise mehr als 20  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen in einem Kühlionen-Kristall implantiert waren (vergleiche [120]). Die Implantationsrate kann, durch Verwendung einer Deflektor-Elektrode der Beamline (z.B. eine der Elektroden von (D3) in Abb. 2.1), durch Verschlechterung der geometrischen Injektionsbedingungen in die Paulfalle beliebig zu kleinen Werten hin verändert werden. Die maximale Implantationsrate ist durch mehrere Faktoren gegeben: Anzahl, in der EBIT pro Extraktionszyklus, produzierter  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen; Transmissionseffizienzen der Beamline in den verschiedenen Bereichen; Grad des Vorkühlens der HCI-Pakete; optimale Abstimmung der Schaltzeitpunkte gepulster Elektroden aufeinander; Anpassung des elektrostatischen Abbremspoten-

tials der Paulfallenelektroden an die mittlere longitudinale kinetische Energie der HCI-Pakete nach dem Abbremsen, inklusive möglicher Drifts sämtlicher Netzteile. Im Rahmen der Messreihe zum Retrapping-Prozess aus Abbildung 2.19 wurden anschließend  $\text{Ar}^{13+}$ -Implantationsraten von  $5\text{ s}^{-1}$  bis  $10\text{ s}^{-1}$  beobachtet. Hierbei wurden die HCI-Pakete mit einer Frequenz von  $2\text{ Hz}$  aus der EBIT extrahiert. Innerhalb dieses  $2\text{ Hz}$  Injektionszyklus wurden wiederholt ca.  $68(15)$   $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen für  $70\text{ ms}$  ungekühlt gespeichert. Dies entspricht einer Implantationseffizienz, definiert als prozentuales Verhältnis zwischen ungekühlt speicherbaren und implantierten HCIs, von  $(6 - 19)\%$ . Für die hoch-präzise Laser-Spektroskopie kalter, lokalisierter HCIs sind Implantationsraten in der Größenordnung von  $1\text{ s}^{-1}$  bis  $5\text{ s}^{-1}$  ausreichend, da hier z.B. für Quantenlogik-Methoden nur ein einzelnes HCI benötigt wird.



**Abbildung 2.25:** Zusammenfassung des Ladeprozesses von HCIs in einen kontinuierlich lasergekühlten  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall. a) Schematische Illustration der experimentellen Anordnung für die Präparation kalter HCIs, bestehend aus einer EBIT als Produktionsort für HCIs, einer Beamline zum Abbremsen und Vorkühlen extrahierter HCI-Pakete und einer linearen Paulfalle mit Möglichkeiten zur externen Injektion von Ionen in Kombination mit den elektrostatischen Spiegeln zur Realisierung von Reflektions-Zyklen in der Paulfalle. Die CCD-Bild Ausschnitte in Abbildung a) sind beide identisch und  $640\text{ }\mu\text{m}$  lang. Komponenten: (a) Elektronenkanone, (b) Elektronenstrahl, (c) supraleitende Helmholtz-Spulen, (d) Atomstrahl, (e) EBIT-Fallenelektroden für axialen Einschluss, (f) Elektronenkollektor, (g) Abbildungssystem, (h)  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall, (i) Paulfallenelektroden (zur Übersicht nur Haupt- und keine Vorfallelektroden gezeigt), (j) elektrostatische Spiegel EM1 und EM2. b) Schematische Darstellung der verwendeten gepulsten Potentiale (ausgerichtet im Vergleich zu den jeweiligen Komponenten aus a)). Blaue durchgezogene bzw. gestrichelte Kurven repräsentieren die Potentiale vor bzw. nach den Schaltzeitpunkten. Orangefarbene Pfeile bezeichnen das schnelle Schalten der Elektroden Spannungen, während schwarze Pfeile die Bewegung der HCI-Pakete symbolisieren. Die Länge schwarzer Pfeile kodiert dabei die Größe der mittleren, longitudinalen kinetischen Energie der HCI-Pakete. Teilweise entnommen aus der, während dieser Promotionsforschung, erstellten Veröffentlichung [120].

Typische kinetische Energien nach den einzelnen Schritten des Prozesses zur Präparation kalter hochgeladener Ionen in einer Paulfalle sind in Abbildung 2.25 zusammengefasst, während die, für die einzelnen Schritte typischen, Effizienzen und Absolutzahlen an  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, die in den vorherigen Abschnitten betrachtet wurden, zusammengefasst im Folgenden gruppiert werden.

Je nach EBIT-Parametern beträgt die Anzahl pro Paket extrahierter  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen vor der Abbremsseinheit  $2 \times 10^4$  (Produktion plus Transmission bis zum Ionendetektor (BD2) ohne Abbremsen der Pakete). Die Anzahl an  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen nach Schritt (2) aus Abb. 2.25 b), die auf  $Qe\bar{V}_f = 130.6 \text{ eV}/Q$ , unter Nutzung der Vorkühleigenschaften des Abbremsystems mit  $(V_{PDT1}, V_{PDT2})$  von (450 V, 650 V), verlangsamt wurden, beträgt ca.  $1 \times 10^4$ , somit liegen typische Effizienzen der Abbremsseinheit bei ca. 50 %. Unter den gerade genannten Abbrems- und Vorkühlbedingungen haben ungefähr 10 % der  $1 \times 10^4$   $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen pro Paket longitudinale kinetische Energien, die für längere Retrapping-Zeiten und somit für die Implantation in Kühllionen-Kristalle geeignet sind. Da, für die gegebenen experimentellen Bedingungen, im Schnitt ca. 100  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen durch die Paulfalle transmittiert und mit (BD2) detektiert werden können, ist von einer Kombination aus Transmissions- und Injektions-Effizienz von 7 % auszugehen. Dies erscheint im Vergleich mit Abbildung 2.23 und der Annahme, dass die HCI-Pakete unter höheren Divergenzwinkeln in die Paulfalle eintreten, realistisch. Die Retrapping-Effizienz, definiert als Verhältnis transmittierter zu längerfristig, ungekühlt speicherbaren Ionenzahlen wurde zu 75 % bestimmt. Die, oben definierte, Implantationseffizienz liegt für die in Abbildung 2.25 gezeigten typischen HCI-Energien bei (6 – 19) %.

Die Effizienz des gesamten Präparations-Prozesses für die angegebenen HCI-Energien, ausgehend von den extrahierten und bis zur Abbremsseinheit transmittierten  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionenpaketen, liegt somit bei (0.2 – 0.5) %.

Diese Effizienz ist für die angestrebten, sowie die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente vollkommen ausreichend und muss für die meisten Anwendungen herunter geregelt werden. Wäre eine Effizienzerhöhung notwendig, so könnte zum einen die Anzahl an HCIs mit Energien im, für die Implantation und das Retrapping geeigneten Bereich, durch optimierte Wahl der Spannungen  $(V_{PDT1}, V_{PDT2})$  um fast eine Größenordnung erhöht werden (mit jetzigem Aufbau möglich). Zum anderen könnten die Injektionseffizienz in die Paulfalle und die Transmission von Abbremsseinheit zu Paulfalle durch Einbau zusätzlicher Elektroden verbessert werden.

## 2.6 Dreidimensionale HCI/Kühlion-Mischkristalle

### 2.6.1 Konstanz der Ladungsdichte

Die sukzessive Erzeugung eines HCI/Be<sup>+</sup>-Mischkristalls ist in Abbildung 2.26 zu erkennen. Ausgangspunkt ist ein Be<sup>+</sup>-Coulomb-Kristall, in den erst ein einzelnes HCI und anschließend ein weiteres HCI, mit Ladungszustand  $Q_{HCI}$ , implantiert wird. Nach erfolgreicher Implantation erhält man ein, für die Fallen-, Laser- und Ionen-Parameter charakteristisches, spezifisches Fluoreszenzbild des Mischkristalls. Dieses ändert sich nicht mehr zwischen aufeinanderfolgenden CCD-Aufnahmen, solange keine Ionenverluste auftreten (Laser- und Fallenparameter ebenfalls unverändert). Somit kann von einem Kräftegleichgewicht für die individuellen Ionenpositionen ausgegangen werden und es gilt:

$$\Phi_{trap}(\vec{r}) + \Phi_{sc}(\vec{r}) + \Phi_{laser}(\vec{r}) = \text{const.}, \quad (2.18)$$

d.h. die Summe aus Fallenpotential, Raumladungspotential und Laserpotential, welches durch die Verwendung eines einzelnen Kühllasers entsteht, ist für alle Positionen im Kristallvolumen (Zero-Temperature-Charged-Fluid-Modell [175]) konstant. Da das Laserpotential linear mit der Position eines Be<sup>+</sup>-Ions entlang der Fallenachse ansteigt, folgt aus Gleichung (2.18) die Beziehung:

$$\Delta\Phi_{trap}(\vec{r}) + \Delta\Phi_{sc}(\vec{r}) = 0. \quad (2.19)$$

Da das Paulfallen-Pseudopotential harmonischer Natur ist, d.h.  $\Phi_{trap} \propto x^2, y^2, z^2$ , gilt weiterhin  $\Delta\Phi_{trap} = \text{const.}$ . Einsetzen der Poisson-Gleichung  $\Delta\Phi_{sc}(\vec{r}) = -\rho(\vec{r})/\epsilon_0$  in Gleichung (2.19), wobei  $\rho(\vec{r})$  die Ladungsdichte im Kristallvolumen bezeichnet, führt über

$$\Delta\Phi_{sc}(\vec{r}) = \frac{-\rho(\vec{r})}{\epsilon_0} = \text{const.} \quad (2.20)$$

direkt zur Konstanz der Ladungsdichte innerhalb des Kristallvolumens. Auch wenn das Paulfallen-Potential streng genommen kein echtes elektrostatisches Potential ist, da es die Laplace-Gleichung nicht erfüllt. Die Konstanz der Ladungsdichte in einem Mischkristall, bestehend aus den zwei verschiedenen einfach geladenen Ionensorten <sup>24</sup>Mg<sup>+</sup> und <sup>40</sup>Ca<sup>+</sup>, wurde für große Coulomb-Kristalle in [218] experimentell bestätigt.

Für die in Abbildung 2.26 betrachteten HCI/Kühlionen-Mischkristalle, bestehend aus einer Anzahl von  $N_{Be}$  Be<sup>+</sup>-Ionen und  $N_{HCI}$  HCIs, mit einem Gesamtkristallvolumen  $V_G$ , lässt sich Gleichung (2.20) umschreiben zu

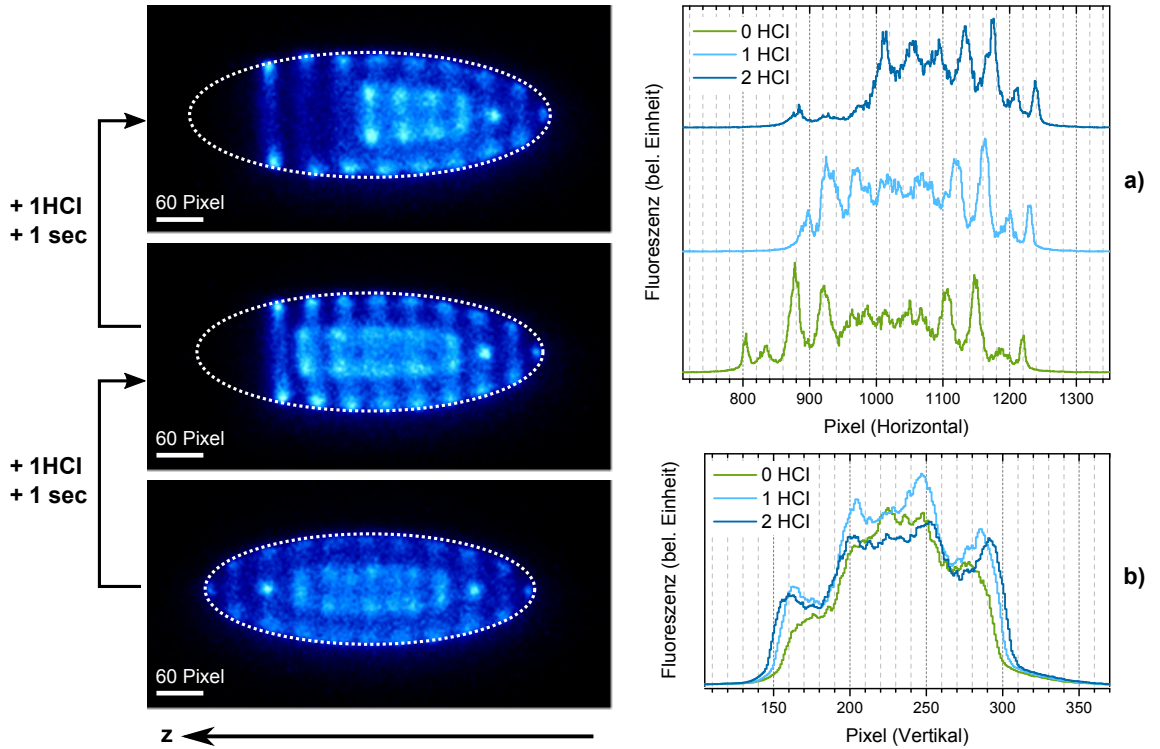
$$\frac{N_{Be} + N_{HCI} Q_{HCI}}{V_G} = \text{const.} = n_0, \quad (2.21)$$

mit der, durch die Paulfallen RF-Parameter bestimmten, Teilchendichte  $n_0$  eines reinen Be<sup>+</sup>-Coulomb-Kristalls.

Da die Anzahl implantierter HCIs für mittelgroße Mischkristalle eindeutig bestimmbar ist, bietet der Vergleich der Kristallvolumina zweier CCD-Aufnahmen mit verschiedener Anzahl ko-kristallisierter HCIs, zusammen mit Gleichung (2.21), prinzipiell die Möglichkeit zur Bestimmung des Ladungszustandes der HCIs nach

$$Q_{HCI} = \frac{N_{Be} \left( 1 - \frac{V_G^{(1)}}{V_G^{(2)}} \right)}{\frac{V_G^{(1)}}{V_G^{(2)}} N_{HCI}^{(1)} - N_{HCI}^{(2)}}, \quad (2.22)$$

wobei  $V_G^{(1)}$ ,  $N_{HCI}^{(1)}$  bzw.  $V_G^{(2)}$ ,  $N_{HCI}^{(2)}$  für die entsprechenden Größen der 1-ten bzw. 2-ten CCD-Aufnahme stehen und angenommen wurde, dass die Anzahl  $N_{Be}$  der  $Be^+$ -Ionen zwischen den Aufnahmen unverändert bleibt (keine Ionenverluste berücksichtigt) und nur eine Sorte an HCIs implantiert wird. Das Kristallvolumen kann näherungsweise mittels Anpassung einer Ellipse an die, in den CCD-Aufnahmen



**Abbildung 2.26:** Links: CCD-Bilderfolge zum konsekutiven Laden von insgesamt zwei  $Ar^{13+}$  Ionen in einen lasergekühlten  $Be^+$ -Kristall, bestehend aus 65(9)  $Be^+$ -Ionen. Aufgenommen unter den gleichen Fallenparametern wie der Coulomb-Kristall in Abbildung 1.41. Es ist jeweils der exakt gleiche Ausschnitt des CCD-Chips bei einheitlicher Intensitäts-Skalierung gezeigt. Beachte die Ausrichtung der z-Achse von rechts nach links. Rechts: a) Vergleich der Projektionen eines je 20 Pixel hohen Streifens um die Fallenachse auf die horizontale Achse des CCD-Bildes für die drei Aufnahmen. b) Vergleich der Projektionen des gesamten, gezeigten Ausschnitts auf die vertikale Achse des CCD-Bildes für die drei Aufnahmen.

sichtbare, Kristallgrenze bestimmt werden, wie in Abbildung 2.26 illustriert wird. Große und kleine Halbachse ( $L$  und  $R$ ) der Projektions-Ellipse (und damit des Rotationsellipsoids) werden je durch die Ausdehnungen der Intensitätsverteilung, bei Projektion der CCD-Aufnahmen auf die horizontale bzw. vertikale Achse, festgelegt. Wie in der Bildunterschrift zu Abb. 2.26 näher erläutert, wird zur Bestimmung der radialen Ausdehnung das gesamte, detektierte Fluoreszenzlicht auf die vertikale Achse projiziert (Abb. 2.26 b)), während zur Bestimmung der axialen Ausdehnung ein horizontaler Streifen um die Fallenmitte auf die horizontale Achse projiziert wird (Abb. 2.26 a)). Die Ausdehnungen werden je durch den Abfall des Fluoreszenzlichtes am Rand des Kristalls festgelegt (axial durch den Abfall des Fluoreszenzlichtes des einzelnen Ions am rechten Rand bestimmt, radial durch den Abfall des Fluoreszenzlichtes der äußersten Schale). Für den axialen Fall wird die große Halbachse direkt durch das äußerste, rechte  $\text{Be}^+$ -Ion bestimmt, indem der axiale Schwerpunkt als, durch die Aufnahme ohne HCIs, bekannt vorausgesetzt wird.

Wie sowohl an den Ellipsen der CCD-Aufnahmen, als auch den Projektionen der Fluoreszenz deutlich wird, nimmt das Volumen des Mischkristalls mit der Anzahl implantierter HCIs nach  $V_G^{(2)} > V_G^{(1)} > V_G^{(0)}$  immer weiter zu, wobei der obere Index für die Anzahl implantierter HCIs steht. Es ergeben sich die folgenden Volumina, in Pixel, die nach Gleichung (2.22) zu den korrespondierenden Werten für den Ladungszustand der implantierten HCIs führen:

$$\left. \begin{array}{l} V_G^{(0)} = 4.075(122) \times 10^6 \text{ px}^3 \\ V_G^{(1)} = 4.879(137) \times 10^6 \text{ px}^3 \\ V_G^{(2)} = 5.696(151) \times 10^6 \text{ px}^3 \end{array} \right\} \begin{array}{l} \frac{V_G^{(1)}}{V_G^{(0)}} = 1.197(049) \Rightarrow Q_{HCI} = 13 \pm 4 \\ \frac{V_G^{(2)}}{V_G^{(0)}} = 1.398(056) \Rightarrow Q_{HCI} = 13 \pm 3 \end{array}$$

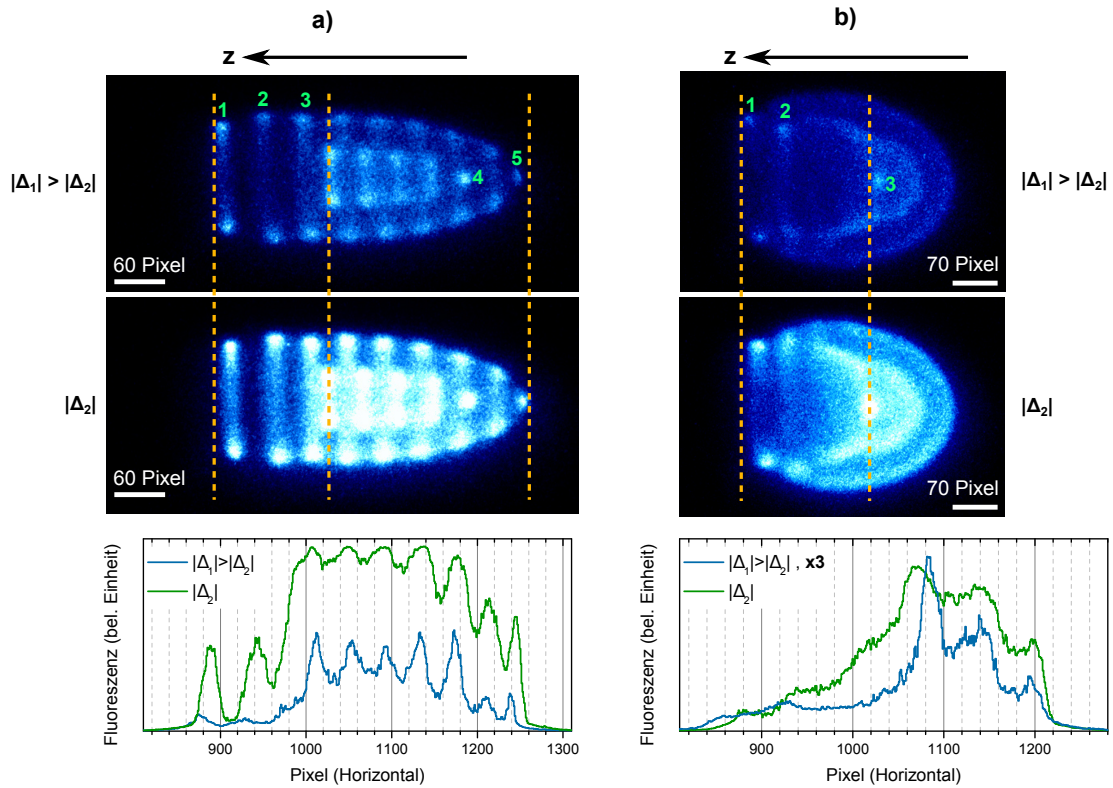
Zur Berechnung des Ladungszustandes wurde der, anhand der Fallenparameter und der Kenntnis von  $V_G^{(0)}$ , bestimmte Wert von 65(9) für die Anzahl der  $\text{Be}^+$ -Ionen verwendet. Man erkennt an dem Ergebnis der Berechnung des Ladungszustandes, die auf der Konstanz der Ladungsdichte des Mischkristalls beruht, dass diese Methode nicht genau genug für eine eindeutige Bestimmung des Ladungszustandes ist. Selbst wenn die  $N_{Be}$  bis auf ein  $\text{Be}^+$ -Ion genau und die Halbachsen der Ellipsen auf ein halbes Pixel genau bekannt wären, könnte man unmittelbar benachbarte Ladungszustände, bei der betrachteten Mischkristall-Konfiguration, nicht eindeutig voneinander trennen. Hinzu kommt, dass mögliche  $\text{Be}^+$ -Ionenverluste in Folge der HCI-Implantation vernachlässigt werden. Die vorgestellte Methode kann jedoch als einfache Abschätzung angewandt werden und erlaubt unmittelbar die Aussage, dass auf jeden Fall hochgeladene Ionen in den  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall implantiert wurden. Das Seitenverhältnis  $\alpha = R/L$ , von kleiner zu großer Halbachse des Coulomb-Kristalls, steigt für die Mischkristalle aus Abbildung 2.26 mit zunehmender Anzahl implantierter HCIs von  $\alpha^{(0)} = 0.320(5)$  über  $\alpha^{(1)} = 0.326(5)$  auf  $\alpha^{(2)} = 0.331(5)$ . Eine Abweichung des Wertes von  $\alpha$  für Mischkristalle von dem Wert, der dem Verhältnis der axialen zur radialen Fallenfrequenz eines einzelnen  $\text{Be}^+$ -Ions entspricht, ist nicht ungewöhnlich, wie Molekuldynamik-Simulationen und die experimentel-



len Ergebnisse in [218] zu  $^{24}\text{Mg}^+ / ^{40}\text{Ca}^+$ -Mischkristallen zeigen. Die Abweichungen können prinzipiell, je nach Verhältnis der Fallenfrequenzen und Anzahl an Ionen verschiedener  $Q/M$ -Verhältnisse, in beide Richtungen auftreten.

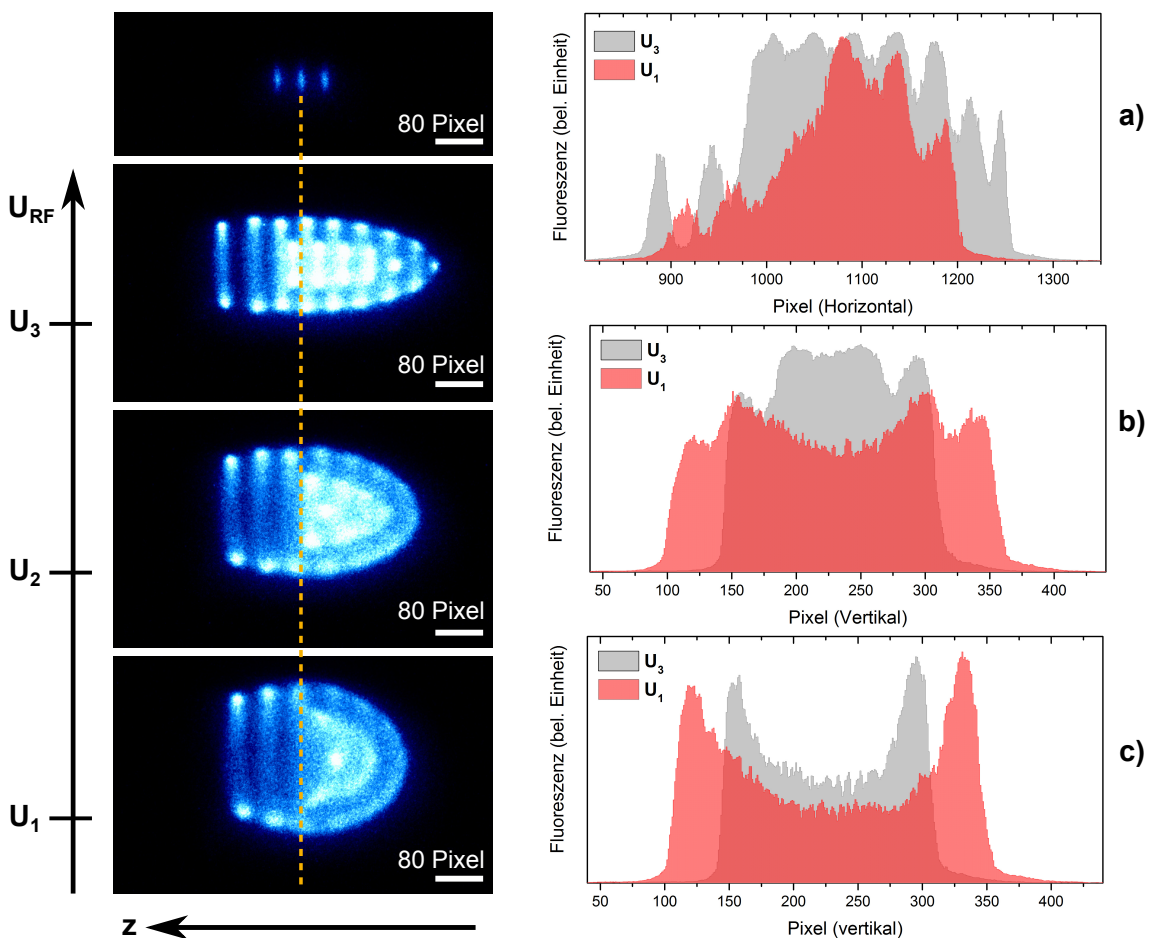
### 2.6.2 Ionenkonfiguration als Minimierung der Gesamtenergie

Die individuellen Ionenpositionen eines Mischkristalls sind durch die Minimierung der Gesamtenergie des Kristalls im Gesamtpotential gegeben. Letzteres wird durch die Fallen- und Laserparameter, sowie die Raumladung der Ionen bestimmt. Die asymmetrische Form der HCI/Kühlion-Mischkristalle ist durch die Verwendung ei-



**Abbildung 2.27:** a) CCD-Bilderfolge ein und desselben  $\text{Be}^+/\text{Ar}^{13+}$ -Coulomb-Kristalls für verschiedene Verstimmungen des Kühllasers. Hierbei ist das obere Bild für einen, gegenüber der atomaren Resonanz, rot verstimmleren Laser aufgenommen worden,  $\Delta_1 > \Delta_2$ . Es ist jeweils der exakt gleiche Ausschnitt des CCD-Chips bei einheitlicher Intensitäts-Skalierung gezeigt. Die orange gestrichelten Linien dienen als optische Referenz für die Verschiebung der  $\text{Be}^+$ -Ionen aufgrund der erhöhten Lichtdruckkraft. Die Fluoreszenzrate der  $\text{Be}^+$ -Ionen ist in der unteren CCD-Aufnahme um den Faktor 3 gegenüber der oberen erhöht. Ganz unten befindet sich der Vergleich der Projektionen eines je 30 Pixel hohen Streifens um die Fallenachse auf die horizontale Achse des CCD-Bildes für die beiden Aufnahmen. b) analog zu a), allerdings für einen Coulomb-Mischkristall mit 160(20) statt 65(9)  $\text{Be}^+$ -Ionen, die zudem in einem, im Vergleich zu a), schwächeren radialen Fallenpotential gespeichert sind. Des Weiteren erhöht sich die Fluoreszenzrate pro  $\text{Be}^+$ -Ion zwischen dem oberen und unteren CCD-Bild hier um den Faktor 5 und die Breite des Ausschnitts für die horizontale Projektion beträgt 50 Pixel.

nes einzelnen Kühllaser-Strahls entlang der Fallenachse bedingt. Da ausschließlich die  $\text{Be}^+$ -Ionen durch den Kühllaser mit einer Wellenlänge von 313 nm zur Fluoreszenz angeregt werden, erfahren auch nur sie die, mit der Anregung verbundene, Lichtdruck-Kraft in Richtung des Wellenvektors des Kühllaserstrahls. Damit verschiebt sich das axiale Potentialminimum eines reinen  $\text{Be}^+$ -Kristalls kollinear zum Laserstrahl, während das axiale Potentialminimum der dunklen, hochgeladenen Io-



**Abbildung 2.28:** Links: CCD-Bilderfolge ein und desselben  $\text{Be}^+/\text{Ar}^{13+}$ -Coulomb-Kristalls für verschiedene Stärken des radialen Fallenpotentials mit  $U_3 > U_2 > U_1$ . Es ist jeweils der exakt gleiche Ausschnitt des CCD-Chips bei einheitlicher Intensitäts-Skalierung gezeigt. Beachte die Ausrichtung der  $z$ -Achse von rechts nach links. Als Referenz für die  $\text{Be}^+$ -Fallenmitte unter den gegebenen Laserparametern wurde ganz oben eine CCD-Aufnahme von drei  $\text{Be}^+$ -Ionen eingefügt. Die Fallenmitte für ein einzelnes HCI würde sich demnach bis zu ca. 10 Pixel links von der gestrichelten Linie befinden. Rechts: a) Vergleich der Projektionen eines je 27 Pixel hohen Streifens um die Fallenachse auf die horizontale Achse des CCD-Bildes für die Aufnahmen bei  $U_1$  und  $U_3$ . b) bzw. c) vergleicht die Projektionen eines 40 Pixel breiten Streifens um die radial größte Ausdehnung des Kristalls bzw. eines 32 Pixel breiten Streifens um die Position maximaler Ausdehnung des dunklen HCI-Bereichs auf die vertikale Achse der CCD-Bilder für die Aufnahmen bei  $U_1$  und  $U_3$ .

nen direkt dem Minimum des axialen harmonischen Fallenpotentials entspricht. Durch Erhöhung der einseitigen Lichtdruckkraft auf die  $\text{Be}^+$ -Ionen, in dem z.B. der Kühlaserstrahl blauer verstimmt wird, verändern sich in einem Mischkristall zusätzlich die relativen Ionenpositionen, wie in Abbildung 2.27 für zwei verschiedene radiale Fallenpotentiale und Kristallgrößen gezeigt wird. In Abb. 2.27 a) wurde zwischen den beiden CCD-Aufnahmen die mittlere Streurate eines einzelnen  $\text{Be}^+$ -Ions ca. um den Faktor drei erhöht. Dadurch verschieben sich die, mit 1 – 3 gekennzeichneten Ionen ungefähr doppelt so stark in axialer Richtung, wie es für die Ionen 4 – 5 der Fall ist. Bei Erhöhung der Streurrate in einem reinen  $\text{Be}^+$ -Kristall unter ähnlichen Bedingungen verschob sich ausschließlich der Schwerpunkt des Kristalls entlang der Fallenachse, bei unveränderten Relativpositionen der Ionen. Die Verschiebung der Ionenposition 2 in Abb. 2.27 b), bei Erhöhung der Lichtdruckkraft um ungefähr das Fünffache, führt zu einer Veränderung der Grenze des dunklen, das HCI umgebenden, Bereichs.

Die einhüllende Form des Mischkristalls, ist zum einen, wie bei einkomponentigen Coulomb-Kristallen, durch die Stärke des radialen und axialen Ioneneinschlusses und damit durch die entsprechenden Fallenfrequenzen  $f_r, f_z$  festgelegt. Zum anderen hängt das sich ausbildende Seitenverhältnis, neben dem Verhältnis der Fallenfrequenzen eines einzelnen Kühlions, zusätzlich von der Gesamtzahl der Ionen und der Anzahl implantierter HCIs ab. Abbildung 2.28 zeigt eine CCD-Bilderserie, aufgenommen bei Erhöhung der RF-Spannung  $V_{RF}$ . Zusätzlich sind für die beiden Extremfälle  $V_{RF} = U_1, U_3$  die axialen (Abb. 2.28 a)) und radialen (Abb. 2.28 b)) Projektionen des Fluoreszenzlichtes auf die horizontale bzw. vertikale Achse zu sehen, zusammen mit einer Projektion der dunklen, das HCI umgebenden, Region auf die vertikale Achse (Abb. 2.28c)). Das Seitenverhältnis des Mischkristalls halbiert sich beim Erhöhen der RF-Spannung von  $U_1$  auf  $U_3$ , von 0.659(7) auf 0.331(5). Die hochgeladenen Ionen bewegen sich in diesem Fall rein axial in Richtung Fallenzentrum. Möchte man für laserinduzierte Fluoreszenz-Spektroskopie der HCIs selbige auf axiale Positionen mit minimaler Excess Mikrobewegung setzen, so sind folglich sämtliche Fallenparameter zu berücksichtigen. Bei Erhöhung der Stärke des radialen Fallenpotentials von  $U_1$  auf  $U_3$  verringert sich gleichzeitig der vertikale Durchmesser der rundlichen, dunklen Region um das innen liegende HCI von 198(6)  $\mu\text{m}$  auf 129(4)  $\mu\text{m}$ , da dann die Coulomb-Kraft der höheren Ladung des HCIs die  $\text{Be}^+$ -Ionen radial nur noch weniger weit wegdrücken kann, bevor sie durch die harmonische Kraft des radialen Fallenpotentials ausgeglichen wird.

### 2.6.3 Zentrierung von Mischkristallen im RF-Feld

Eine radiale Verschiebung von der Symmetrieachse weg oder eine axiale Verschiebung entlang der RF-Null-Linie eines einzelnen Ions (oder des Kristallschwerpunktes einer einheitlichen Ionensorte) durch elektrische DC-Felder ist durch das entsprechende Kräftegleichgewicht zwischen Lorentzkraft und der Kraft durch

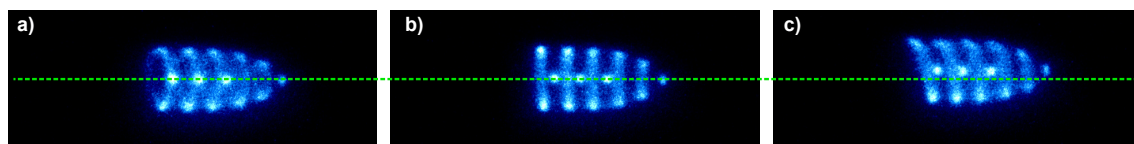
das harmonische Pseudopotential näherungsweise durch

$$u_i^{ion} = \frac{Qe \vec{E}_{DC} \hat{u}_i}{M \omega_i^2} \quad i \in \{r, z\} \quad (2.23)$$

gegeben (siehe auch [132, 219, 220]). Dabei steht  $u_i^{ion}$  für die Verschiebung der Ionenposition, relativ zum Fallenzentrum, in radiale Richtung  $r$  oder axiale Richtung  $z$  und  $\hat{u}_i$  für den entsprechenden, dimensionslosen Einheitsvektor. Für rein axiale DC-Felder werden alle gespeicherten Ionen gleichartig entlang der Fallennachse, unabhängig von ihrem  $Q/M$ -Verhältnis verschoben, da nach Gleichung (1.16d) aus Kapitel 1.1.3  $\omega_z^2 \propto Q/M$  gilt. Zusätzliche statische E-Felder in axialer Richtung bewirken somit nur eine Verschiebung des axialen Potentialminimums und zwar für alle Ionensorten gleichermaßen. Für die radialen Fallenfrequenzen gilt für den, hier anwendbaren Fall  $\omega_z \ll \omega_r$ , nach den Gleichungen (1.16b und c) und (1.17) die Abhängigkeit  $\omega_r^2 \propto (Q/M)^2$ , so dass für ein gegebenes, rein radiales, elektrisches DC-Feld die radiale Verschiebung vom  $Q/M$ -Verhältnis des Ions gemäß folgender Beziehung abhängt:

$$u_r^{ion} \propto M/Q. \quad (2.24)$$

Somit wäre bei gegebenem radialen elektrischen DC-Feld, die radiale Verschiebung eines  $\text{Be}^+$ -Ions ungefähr um den Faktor 3 größer als die eines  $\text{Ar}^{13+}$ -Ions. Betrachtet man einen  $\text{Ar}^{13+}/\text{Be}^+$ -Mischkristall unter Einwirkung eines radialen, statischen E-Feldes, so müssten sich nach Gleichung (2.23) die Relativ-Positionen zwischen den Ionen ebenfalls ändern. Dies kann qualitativ experimentell bestätigt werden, wie in Abbildung 2.29 beispielhaft gezeigt wird. Hier wurde zur Demonstration ein Mischkristall mit einem  $\text{Ar}^{13+}$ -Ion erzeugt, nachdem die individuellen DC-Spannungen der Hauptfallen-Mittelelektroden mit den in Kapitel ?? beschriebenen Methoden so angepasst worden waren, dass der  $\text{Be}^+$ -Kristall - und damit auch ein Mischkristall - zentriert war. Das Resultat in Form eines CCD-Fluoreszenzbildes ist in Abb. 2.29 b) gezeigt. Anschließend wurde ein radiales elektrisches DC-Feld entweder in der Falle senkrecht zum CCD-Chip angelegt (Abb. 2.29 a)) oder das in der Falle angelegte radiale statische E-Feld verlief parallel zum CCD-Chip (Abb. 2.29 c)). Die



**Abbildung 2.29:** Zur Verdeutlichung von Gleichung (2.23) aufgenommene CCD-Bilderfolge eines  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalls, in den 1  $\text{Ar}^{13+}$ -Ion implantiert wurde. In a)-c) ist stets der gleiche CCD-Bildausschnitt zu sehen. In b) wurden keine radialen elektrischen DC-Felder extra angelegt. Für die Aufnahmen a) und c) wurden senkrecht zueinander stehende radiale elektrische DC-Felder angelegt. In a) wurde das E-Feld in der Falle senkrecht zum CCD-Chip angelegt, in c) verlief das in der Falle angelegte radiale E-Feld parallel zum CCD-Chip. Man erkennt durch den Vergleich a)-c), dass sich die Positionen von  $\text{HCl}$  und  $\text{Be}^+$ -Ionen relativ zueinander verschieben. Die grüne, gestrichelte Linie markiert die Fallennachse.

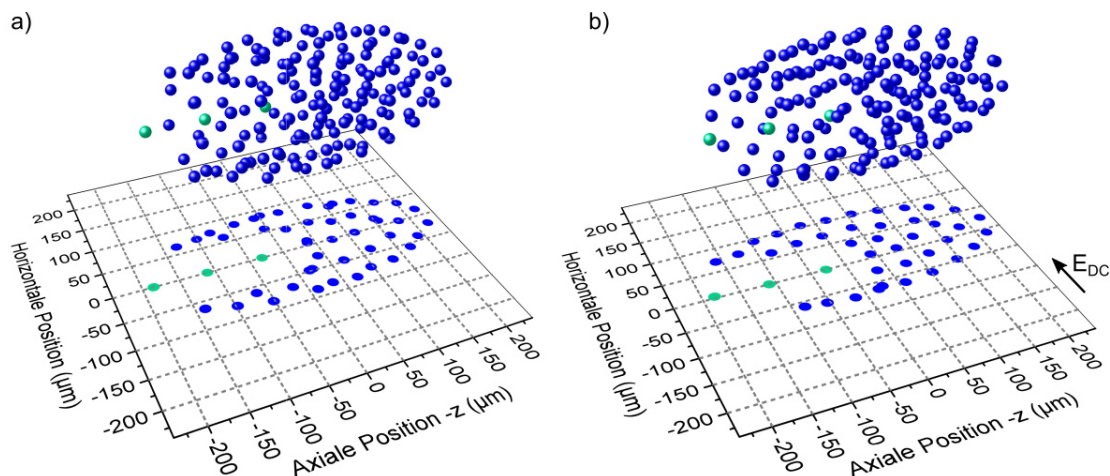
radial verschobenen Mischkristalle zeigen je eine, wie oben diskutiert, zu erwartende asymmetrische Ionenverteilung. Dies kann als weitere Methode, zusätzlich zu den in Kapitel ?? genannten, genutzt werden, den Mischkristall im RF-Feld zu zentrieren und damit die  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen entlang der Fallenachse zu positionieren.

Aufgrund der Massenabhängigkeit des Paulfallen-Pseudopotentials kann diese Methode prinzipiell auch auf Mischkristalle, bestehend aus Ionen gleicher Ladung aber unterschiedlicher Masse, angewandt werden. Bei dem vorliegenden Experiment ist es z.B. möglich, durch kurzfristiges Einlassen eines sehr schwachen Stroms an  $\text{H}_2$ -Gas in die Fallenregion  $\text{BeH}^+$ -Molekülionen zu erzeugen, die sich radial außen an den  $\text{Be}^+$ -Kristall anlagern. Auch hier kann die Beobachtung einer relativen Verschiebung der Ionensorten zueinander, aufgrund radialer, statischer E-Felder, zur Zentrierung der Mischkristalle, verwendet werden. Ziel ist in beiden Fällen ( $\text{HCI}/\text{Be}^+$ -Kristall bzw.  $\text{BeH}^+/\text{Be}^+$ -Kristall) die Kompensation kleiner statischer E-Felder, die z.B. bei Aufheiz-Zyklen der kryogenen Paulfalle oder durch das Laden von  $\text{Be}^+$ -Kristallen sich verändern bzw. entstehen können, durch Anlegen individueller DC-Spannungen an die Hauptfallenelektroden. Wie aus Gleichung (2.23) ablesbar ist, steigt die Genauigkeit der Methode zur radialen Zentrierung der Mischkristalle für kleiner werdende radiale Fallenfrequenzen. Daher wurde die experimentelle Zentrierung in der Regel bei möglichst niedrigen RF-Spannungsamplituden vorgenommen. Für laserinduzierte Fluoreszenz-Spektroskopie der  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen ist, zur Minimierung der Temperatur des Ionenensembles, ein möglichst gut zentrierter Mischkristall mit kleinem Seitenverhältnis  $\alpha = R/L$ , der die HCIs umschließt, wünschenswert.

#### 2.6.4 Abschirmung elektrostatischer Felder durch den $\text{Be}^+$ -Kristall

Gleichung (2.23) verliert ihre Gültigkeit, sobald die radiale Verschiebung größerer  $\text{Ar}^{13+}/\text{Be}^+$ -Kristalle, aufgrund elektrostatischer, radialer Felder, betrachtet wird. Hier werden die HCIs teilweise (axial am äußersten Rand liegende  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen) oder vollständig (mittiger liegende  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen) durch die, radial leichter verschiebbaren,  $\text{Be}^+$ -Ionen abgeschirmt.

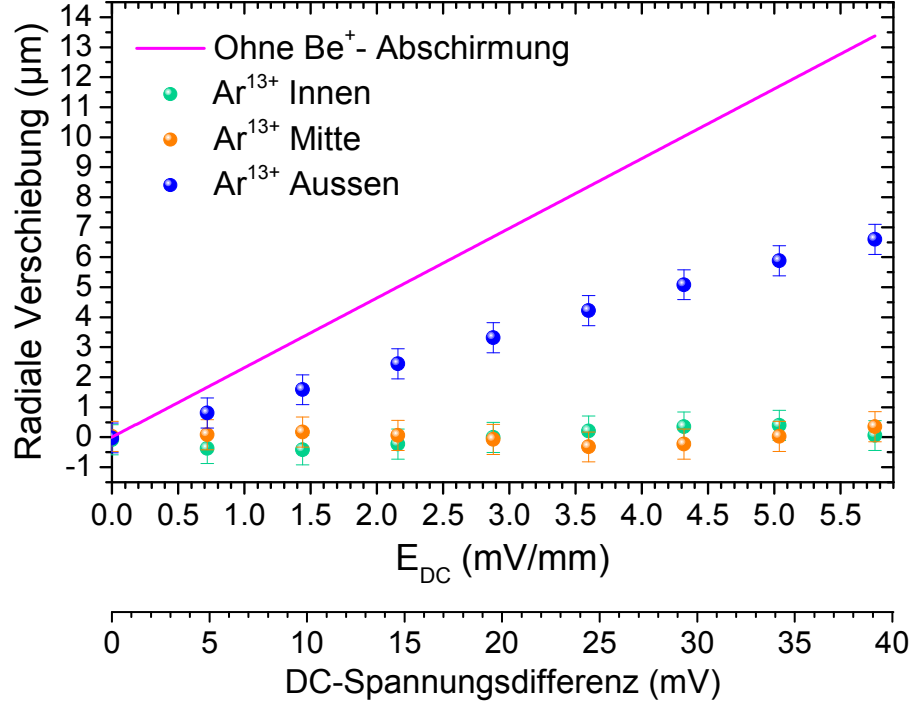
Ausgangspunkt zur Betrachtung der Abschirm-Fähigkeit des  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristalls war die experimentelle Beobachtung, dass beim Anlegen rein radialer, elektrostatischer Felder (wie sie zur Kompensation der normalen radialen Mikrobewegung genutzt werden) der  $\text{Be}^+$ -Kristall sich radial um die, auf der Fallenachse angeordneten,  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen herum verschiebt, während sich der radiale Mittelpunkt der rundlichen, dunklen Region um das HCI, nicht beobachtbar verschiebt. Dieses Verhalten wurde anschließend mit Hilfe vereinfachter (keine Mikrobewegung) Molekulardynamik-Simulationen nach dem Vorbild von [113] untersucht. Die Korrektheit der molekulardynamischen Simulationen wurde anhand von  $\text{Ar}^{13+}/\text{Be}^+$ -Ionenketten getestet. Denn hier lassen sich, für verschiedene Fallen- und Laserparameter, die Ionenpositionen theoretisch berechnen und mit den Simulations-Ergebnissen vergleichen. In Abbildung 2.30 ist beispielhaft das Ergebnis einer Simulation für die individuellen Ionenpositionen eines Kristalls, bestehend aus 160  $\text{Be}^+$ -Ionen und 3  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, zu sehen. Die Lichtdruck-Kraft des Kühllasers wirkt in der Simulation in  $-z$ -Richtung, so dass die experimentell typischen asymmetrischen Konfigurationen reproduziert



**Abbildung 2.30:** Molekular-dynamik-Simulation (nach dem Vorbild von [113], aber ohne Mikrobewegung) der Ionenpositionen eines Mischkristalls, bestehend aus 160  $\text{Be}^+$ -Ionen (dunkelblaue Kugeln) und 3  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen (hellblaue Kugeln). Es wurden, für ein einzelnes  $\text{Be}^+$ -Ion, entartete radiale Fallenfrequenzen von  $f_r(\text{Be}^+) = 200 \text{ kHz}$  und eine axiale Fallenfrequenz von  $f_z(\text{Be}^+) = 120 \text{ kHz}$  angenommen. Kühlaser-Simulationsparameter: Sättigungsparameter  $s = 30$  und Verstimmung von  $\Delta = -1.6\Gamma$  ( $\beta = 0.45 \times 10^{-20} \text{ kg s}^{-1}$ ,  $F_0 = 0.9 \times 10^{-19} \text{ N}$ , vergleiche Gleichungen (1.30) und (1.29) aus Kapitel 1.2.1), ein Kühlaser-Strahl entlang der  $-z$ -Achse (von links kommend in Abbildungen a) und b)). Für die Simulation, deren Ergebnis in Abbildung b) zu sehen ist, wurde zusätzlich ein statisches, elektrisches Feld der Größe  $2.88 \text{ mV mm}^{-1}$ , entlang der horizontalen Achse (wie eingezeichnet), angelegt. Die Projektionen der Ionenpositionen wurden für einen Bereich von  $\pm 25 \mu\text{m}$  um die Fallenmitte, parallel zu der dargestellten Ebene durchgeführt. In b) sind die beiden innen liegenden HCIs, aufgrund der Abschirmung durch die Verschiebung der  $\text{Be}^+$ -Ionen, auf der Fallenachse positioniert, während das äußerste HCI leicht, um  $2.9(5) \mu\text{m}$ , in E-Feld-Richtung verschoben ist.

werden. Abbildung 2.30 a) zeigt die simulierten individuellen Ionenpositionen, zusammen mit der Projektion des mittleren Teils des Kristalls auf eine Ebene parallel zur Fallenachse, ohne Anlegen eines radialen, elektrostatischen Feldes. Die 3  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen sind entlang der Fallenachse angeordnet. Für Abbildung 2.30 b) wurde, wie skizziert, ein radiales E-Feld der Stärke  $2.88 \text{ mV mm}^{-1}$  angelegt. Nach Gleichung (2.23) würde dieses Feld ein einzelnes  $\text{Be}^+$ -Ion (oder den radialen Mittelpunkt eines reinen  $\text{Be}^+$ -Kristalls) um  $19.55 \mu\text{m}$  und ein einzelnes  $\text{Ar}^{13+}$  um  $6.68 \mu\text{m}$  radial verschieben. Wie in der Projektion der Ionenpositionen in Abb. 2.30 b) zu erkennen, wird bei dem betrachteten Mischkristall der Schwerpunkt der Gesamtheit der  $\text{Be}^+$ -Ionen stattdessen um  $23.6(5) \mu\text{m}$  verschoben, während die beiden innen liegenden  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen auf der Fallenachse verbleiben und das äußerste  $\text{Ar}^{13+}$ -Ion um  $2.9(5) \mu\text{m}$  verschoben wird.

Durchführung der Simulation, für den Mischkristall aus Abb. 2.30, in Abhängigkeit des angelegten elektrostatischen Feldes ergibt, dass die radiale Auslenkung des äußersten  $\text{Ar}^{13+}$ , stets geringer als der entsprechende Wert aus Gleichung (2.23) verschoben wird, während die beiden weiter innen liegenden HCIs, im Rahmen der Fehlerbalken der Simulations-Ergebnisse, nicht von der Fallenachse weg verschoben



**Abbildung 2.31:** Molekuldynamik-Simulation (siehe Abb. 2.30) der radialen Verschiebung implantierter HCl in Abhängigkeit des angelegten radialen elektrostatischen E-Feldes. Die Simulation wurde für einen Mischkristall, bestehend aus 160  $Be^+$ -Ionen (dunkelblaue Kugeln) und 3  $Ar^{13+}$ -Ionen (hellblaue Kugeln) durchgeführt. Es wurden, für ein einzelnes  $Be^+$ -Ion, entartete radiale Fallenfrequenzen von  $f_r(Be^+) = 200$  kHz und eine axiale Fallenfrequenz von  $f_z(Be^+) = 120$  kHz angenommen. Kühlaser-Simulationsparameter: Sättigungsparameter  $s = 30$  und Verstimmung von  $\Delta = -1.6\Gamma$  ( $\beta = 0.45 \times 10^{-20} \text{ kg s}^{-1}$ ,  $F_0 = 0.9 \times 10^{-19} \text{ N}$ , vergleiche Gleichungen (1.30) und (1.29) aus Kapitel 1.2.1), ein Kühlaser-Strahl entlang der  $-z$ -Achse. Die durchgezogene Linie stellt die nach Gleichung (2.23) zu erwartende radiale Verschiebung eines einzelnen  $Ar^{13+}$ -Ions dar. Neben den Werten für das angelegte E-Feld, sind die, für die gegebene lineare Paulfalle, benötigten Spannungsdifferenzen zwischen gegenüberliegenden Elektrodenpaaren eingetragen, die nach durchgeführten SIMION-Simulationen zu dem angelegten E-Feld führen würden.

werden. Der Fehlerbalken wird durch mehrfaches Ausführen der Simulation unter gleichen Parametern und Bestimmung der maximalen Abweichung festgelegt und ist durch die Wahl relativ großer Zeitschritte bedingt.

Befindet sich ein  $Ar^{13+}/Be^+$ -Mischkristall in einem homogenen, radialen elektrostatischen Feld, so führt die, nach Beziehung (2.24), leichtere radiale Verschiebbarkeit der  $Be^+$ -Ionen zu einer Verschiebung des Ladungsschwerpunktes des  $Be^+$ -Ensembles in Richtung des angelegten E-Feldes  $\vec{E}_{DC}$ . Durch die, bzgl. der Fallenachse, asymmetrische Raumladungs-Verteilung des  $Be^+$ -Ionenensembles, wirkt auf die  $Ar^{13+}$ -Ionen eine resultierende Coulomb-Kraft in Gegenrichtung zum angelegten E-Feld. Dadurch kommt es zur Kompensation der, auf die  $Ar^{13+}$ -Ionen wirkenden Lorentzkraft  $Qe\vec{E}_{DC}$ , so dass diese weniger stark von der Fallenachse weg verschoben werden. Sitzen die  $Ar^{13+}$ -Ionen innerhalb des  $Be^+$ -Kristalls, so kann das äußere E-Feld kom-

plett durch die leichtere Verschiebbarkeit der  $\text{Be}^+$ -Ladungen kompensiert werden. Der oben beschriebene Abschirmungs-Effekt ist für laserinduzierte Fluoreszenz-Spektroskopie eines, in einen größeren  $\text{Be}^+$ -Kristall implantierten,  $\text{Ar}^{13+}$ -Ensembles von Bedeutung. Wird der Spektroskopie-Laser möglichst entlang der Fallenachse geführt, so schließt er mit selbiger, für das gegebene Experiment, einen maximalen Winkel von  $0.3^\circ$  ein. Wie groß die Bedeutung radialer Excess-Mikrobewegung der HCIs für die Spektroskopie ist hängt stark von ihrer Verschiebung von der Fallenachse weg ab. Sobald sich ein Ion außerhalb der RF-freien Fallenachse aufhält erfährt es nach Gleichung (1.14) aus Kapitel 1.1.3 eine, durch das RF-Feld getriebene, oszillatorische Mikrobewegung  $r q/2 \cos(\Omega_{RF} t)$ . Orts- bzw. Geschwindigkeitsamplitude der Mikrobewegung sind, für eine radiale Ionenposition mit Abstand  $r$  von der Fallenachse, somit durch

$$A_r = r \frac{q}{2} \quad \text{bzw.} \quad A_v = \Omega_{RF} r \frac{q}{2} \quad (2.25)$$

gegeben. Bedingt durch das geringe, zu erwartende Signal-zu-Rausch-Verhältnis, gepaart mit dem breiten abzusuchenden Frequenzintervall, bei der laserinduzierten Fluoreszenz-Spektroskopie des verbotenen M1-Übergangs in  $\text{Ar}^{13+}$ , wären lange Messreihen (ca. ein Tag pro Mess-Intervall) nötig. Über einen Zeitraum von Tagen, kann es bei CryPTE<sub>x</sub> zur Entstehung elektrostatischer Offset-Felder in der Größenordnung von bis zu  $1 \text{ mV mm}^{-1}$  kommen (patch potentials,  $\text{Be}^+$ -Ladevorgänge). Diese müssten, für zu große Verschiebungen, entweder durch Zentrierung des Mischkristalls kompensiert werden oder können für kleinere Verschiebungen, aufgrund des Abschirm-Effektes, vernachlässigt werden. Denn eine maximale radiale Verschiebung von  $0.5 \mu\text{m}$  eines  $\text{Ar}^{13+}$ -Ions würde bei  $441 \text{ nm}$  einer Doppler-Verschiebung von  $1 \text{ MHz}$  entsprechen. Durch den eingeschränkten Winkel des Spektroskopie-Lasers mit der Fallenachse ergibt sich als Spektroskopie-relevanter Wert nur eine Doppler-Verschiebung von max.  $6 \text{ kHz}$ . Der Abschirm-Effekt von Kühltionen für, im Kristall implantierte, Spektroskopie-Ionen wurde kürzlich experimentell bei der Laser-Spektroskopie von Vibrations-Übergängen im  $\text{HD}^+$ -Ion zu ähnlichem Zwecke ausgenutzt [221].



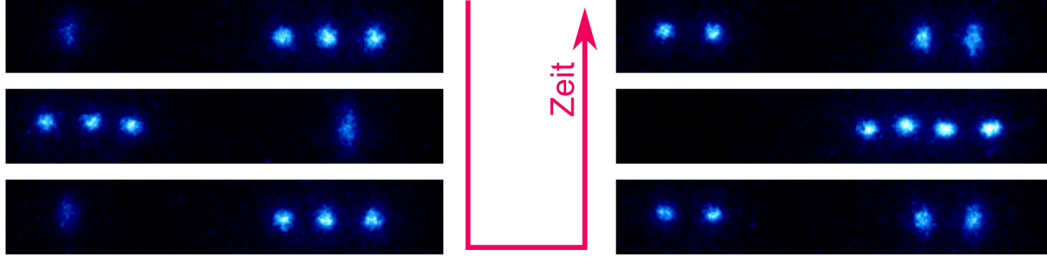
## 2.7 HCI/Be<sup>+</sup>-Ionenketten

### 2.7.1 Übergang zu Ionenketten und HCI-Nachweis

Mit dem gegebenen experimentellen System wird, für das effiziente sympathetische Stoppen von HCIs ein, in der Paulfalle schwebender, Be<sup>+</sup>-Coulomb-Kristall, bestehend aus ca. 50–100 Kühlionen, benötigt. Dies wird in Kapitel 2.5 zusammengefasst und beispielhaft in Abbildung 2.26 aus Kapitel 2.6 gezeigt. Das Stoppen hochgeladener Argonionen in einer Be<sup>+</sup>-Ionenkette konnte, bei den verschiedenen experimentell eingestellten Parametern, nicht beobachtet werden. Man ist somit darauf angewiesen, von größeren oder kleineren dreidimensionalen Coulomb-Mischkristallen zu Ionenketten, bestehend aus dem Kühlion und dem gewünschten HCI, übergehen zu können.

Dies kann für den Fall, dass es sich bei dem gewünschten HCI um Ar<sup>13+</sup> handelt, durch eine Kombination aus Blockierung des Kühllasers, nach vorangegangener Reduktion der RF-Spannung, erreicht werden. Ein Verlustmechanismus für die Be<sup>+</sup>-Ionen ist hier der Effekt der so genannten, von Blümel et al. bereits 1989 in [222] beschriebenen, RF-Heizung. Dieser Heizmechanismus kann auftreten, wenn es zu Ion-Ion-Coulomb-Stößen im Bereich eines starken RF-Feldes kommt. Die Stöße transferieren Energie aus der, durch das RF-Feld getriebenen, Mikrobewegung des einen Ions in die Säkularbewegung des anderen Ions. Dies bringt das Ion aus der Phase mit dem RF-Feld und die aus dem RF-Feld stammende Energie kann somit nicht an selbiges zurück gegeben werden, während neue Mikrobewegungs-Energie aus dem RF-Feld aufgenommen wird. Die Ionen werden somit durch das RF-Feld geheizt. Dieser Effekt ist nach Gleichung (2.25) umso stärker, je weiter sich die Ionen von der Fallenachse entfernt befinden, da die Excess-Mikrobewegungsamplituden mit dem Abstand zur Fallenachse linear zunehmen. Eine starke Reduzierung der RF-Spannung führt dazu, dass ein vormals prolater Mischkristall eine oblate Form annimmt, d.h. die außen liegenden Be<sup>+</sup>-Ionen erfahren eine verstärkte RF-Heizung, während die, sich auf der Fallenachse befindenden Ar<sup>13+</sup>-Ionen davon nicht betroffen sind. Die Blockierung des Kühllasers verstärkt diesen Effekt soweit, dass für längere Zeiten mehr und mehr Be<sup>+</sup>-Ionen die Falle verlassen. Hat ein ausreichender Kühlionenverlust stattgefunden, so wird der Kühllaser wieder deblockiert und die RF-Spannung deutlich erhöht. Wurde zu Beginn nur ein einzelnes Ar<sup>13+</sup>-Ion im Kühlionen-Kristall implantiert, so ging selbiges bei dem vorgestellten kontrollierbaren Be<sup>+</sup>-Ionenverlust in der Regel nicht verloren.

Ist der radiale Einschluss, durch eine entsprechend hohe RF-Spannungsamplitude, deutlich stärker als der axiale, so erhält man Ionenketten, bestehend aus insgesamt  $N$  Ionen verschiedener  $Q/M$ -Verhältnisse. Bei typischen Fallenfrequenzen von  $80 \text{ kHz} < f_z < 115 \text{ kHz}$  und  $300 \text{ kHz} < f_r < 600 \text{ kHz}$  für die verschiedenen Anzahlen an Ionen in der Kette, ist es nur möglich ein einzelnes Ar<sup>13+</sup>-Ion in der Kette sympathetisch zu kühlen. Eine größere Anzahl ko-kristallisierter Ar<sup>13+</sup>-Ionen ist hier nicht möglich, da es dann zu einer schwerer zu kühlenden 3-dim. Zick-Zack- oder Helix-Konfiguration [223, 224] kommen müsste, in der die HCIs radial ausweichen würden.



**Abbildung 2.32:** HCI-Nachweis durch absichtlich erzeugte Konfigurationswechsel einer gemischten Ionenkette. Die Konfigurationswechsel werden durch anlegen kurzer Spannungspulse mit Frequenzen in der Größenordnung 1 Hz an die Elektrode EM1 (siehe Abb. 1.39 aus Kapitel 1.5.3) hervor gerufen. Es ist jeweils der gleiche CCD-Bildausschnitt gezeigt. Würde die dunkle Lücke durch mehrere nicht-fluoreszierende einfach geladene Ionen erzeugt werden, so würde dies durch die Trennung selbiger bei Konfigurationswechseln sichtbar werden.

Einmal geformte  $\text{Ar}^{13+}/\text{Be}^+$ -Ionenketten sind stabil (siehe Abb. 2.32 für verschiedene Konfigurationen der Variante 1  $\text{Ar}^{13+}$  sympathetisch gekühlt von 4  $\text{Be}^+$ -Ionen) und die individuellen Ionen sind an gut definierten Plätzen lokalisiert. Dabei ist das hochgeladene Ion durch eine dunkle Lücke in der Kette charakterisiert, die größer als der, zu der axialen Fallenfrequenz gehörende, Abstand zweier  $\text{Be}^+$ -Ionen ist. Zum Nachweis, dass diese dunkle Lücke nicht durch mehrere, einfach geladene Ionen, sondern durch ein einzelnes HCI entstanden ist, können absichtlich erzeugte Konfigurationswechsel einer gemischten Ionenkette verwendet werden. Wie mittels Abbildung 2.32 illustriert, führt das Anlegen kleiner Spannungspulse an die Elektrode EM1 (siehe Abb. 1.39 aus Kapitel 1.5.3) zu einem Wechsel zwischen den möglichen Konfigurationen einer Ionenkette (teils leichte Zick-Zack-Anordnung) fester Zusammensetzung. Die Frequenz der Neuordnung der Ionenpositionen entspricht dabei der Frequenz, mit der die Spannungspulse an EM1 angelegt werden. Auf CCD-Bildern zwischen denjenigen, die in Abb. 2.32 gezeigt sind, sieht man, dass der Kristall stellenweise delokalisiert ist, mit anschließender Neuordnung. Teils erfolgt die Neuordnung wesentlich unterhalb der Belichtungszeit. Durch die Spannungspulse bekommen einzelne Ionen der Kette Impuls-Kicks. Die damit verbundene kinetische Energie ist dann ausreichend groß, um die transversale Coulomb-Barriere für Hopping zwischen Nachbarstellen von

$$E_C = Q_{\text{HCI}}e^2 / (4\pi\epsilon_0 d_r) \quad (2.26)$$

zu überwinden [225]. Dabei bezeichnet

$$d_r = \sqrt[3]{\frac{Q_{\text{HCI}}e^2}{4\pi\epsilon_0 M_{\text{Be}}\omega_r^2} \left( 1 + \left( \frac{Q_{\text{Be}}}{Q_{\text{Ar}}} \right)^2 \frac{M_{\text{Ar}}}{M_{\text{Be}}} \right)} \quad (2.27)$$

den Abstand zweier Ionen im radialen harmonischen Pseudopotential. Bei einer radialen Fallenfrequenz eines einzelnen  $\text{Be}^+$ -Ions von  $\omega_r/(2\pi) = 300 \text{ kHz}$  entspräche dies einer maximalen kinetischen Energie von  $480 \text{ } \mu\text{eV} = k_B \times 5.6 \text{ K}$  des wechselnden

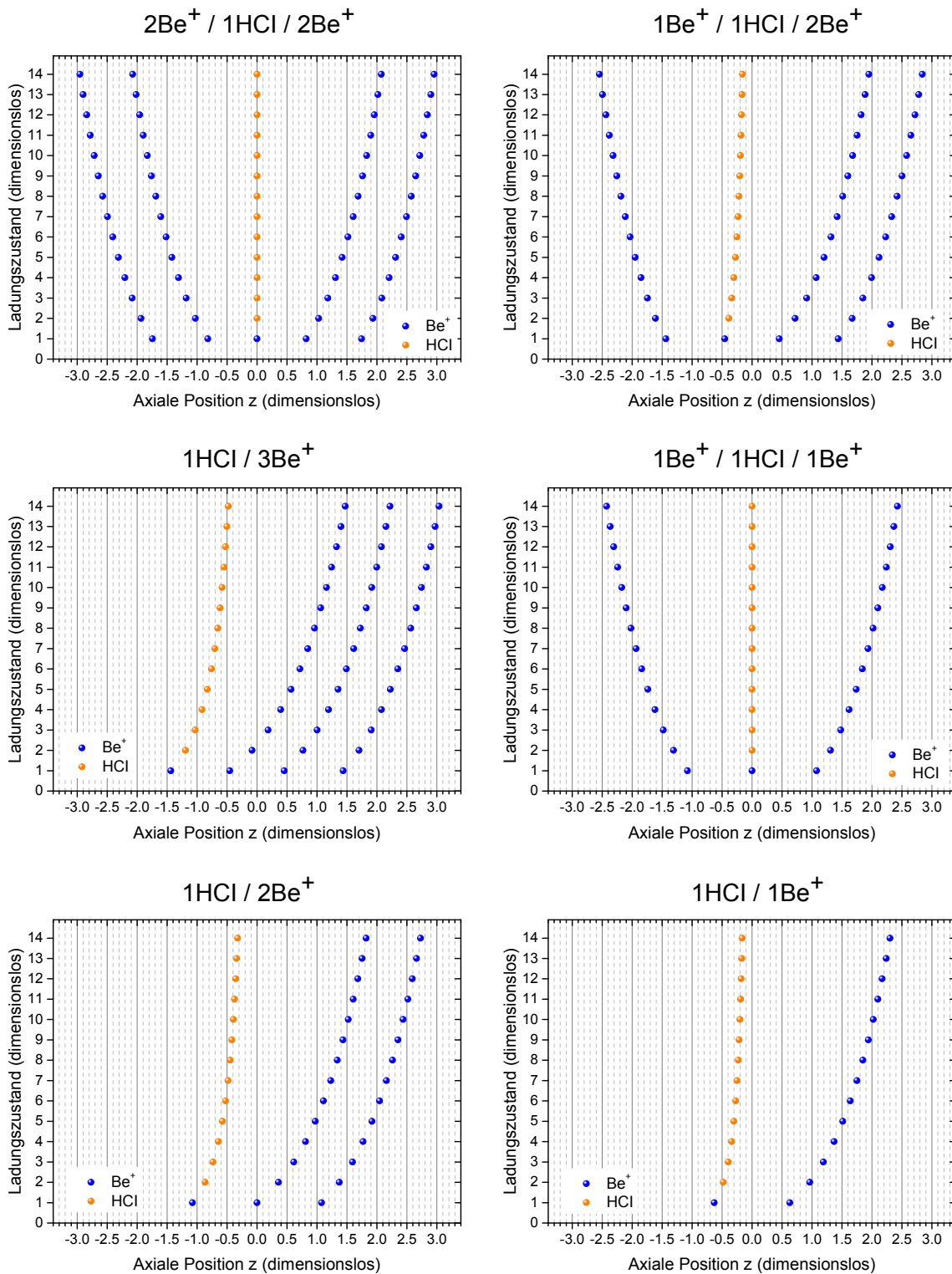
Be<sup>+</sup>-Ions. Thermisch aktivierte Konfigurationswechsel konnten hingegen nicht beobachtet werden. Bei dem Erzeugen von gemischten Ionenketten fällt auf, dass (im Gegensatz zu den dreidimensionalen Mischkristallen) zwar die Ionenkonfiguration mit der niedrigsten Gesamtenergie am häufigsten auftritt, andere Konfigurationen können aber auch, beim Abkühlen einer aufgeheizten Ionenkette, entstehen. Unter den gegebenen experimentellen Bedingungen treten z.B. für eine ungerade Gesamtanzahl am wahrscheinlichsten entweder symmetrische Konfigurationen (HCI sitzt mittig) oder Konfigurationen mit mehr Be<sup>+</sup>-Ionen in der zum Kühllaserstrahl entgegengesetzten Richtung auf. Bei gleicher Lichtdruckkraft von beiden Seiten (zwei sich von der Streurate her balancierende anti-kollineare Kühllaserstrahlen) besitzt die maximal symmetrische Ionenkonfiguration die geringste Energie. Bei Verwendung nur eines Kühllaserstrahls mit maximal möglicher Streurate können Konfigurationen, bei denen eine größere Anzahl Be<sup>+</sup>-Ionen auf der Auslaufseite des Kühllasers sitzen, eine niedrigere Gesamtenergie (Summe aus Coulomb-Energie der Wechselwirkung der Ionen untereinander und ihrer kinetischen Energie im harmonischen Fallenpotential) haben. Für eine axiale Fallenfrequenz von  $\omega_z/(2\pi) = 113 \text{ kHz}$  für ein einzelnes Be<sup>+</sup>-Ion ergibt sich z.B., unter der Annahme keiner resultierenden Lichtdruckkraft), für die Konfigurationen  $2\text{Be}^+/1\text{Ar}^{13+}/4\text{Be}^+$  und  $3\text{Be}^+/1\text{Ar}^{13+}/3\text{Be}^+$  ein Unterschied in der Gesamtenergie von 21 peV. Durch das schnelle Ausfrieren der translatorischen Freiheitsgrade beim Abkühlen eines Ionenensembles können trotzdem alle möglichen Ionenkonfigurationen, wenn auch mit verschieden hoher Wahrscheinlichkeit, erzeugt werden.

Würde die dunkle Lücke durch mehrere nicht-fluoreszierende, einfach geladene Ionen erzeugt werden, so würde dies durch die Trennung selbiger bei Konfigurationswechseln sichtbar werden. So würde man hier erwarten, dass sich bei Umordnungen innerhalb der Kette auch Konfigurationen ergeben, bei denen ein helles Be<sup>+</sup>-Ion zwischen zwei der dunklen, einfach geladenen Ionen sitzt. Stattdessen ergibt sich, wie beispielhaft in Abb. 2.32 gezeigt, nach jedem Konfigurationswechsel eine ähnlich große dunkle Lücke, die nach einem einzelnen Ionenverlust-Ereignis verschwindet und nur die Zahl vorheriger Be<sup>+</sup>-Ionen zurück bleibt. Dies ist ein weiterer indirekter Nachweis, dass ein einzelnes hochgeladenes Ion ko-kristallisiert wurde.

### 2.7.2 Theoretische Ionenpositionen

Im weiteren Verlauf wird ein, in einer linearen Paulfalle gespeicherter, Coulomb-Mischkristall, bestehend aus  $N$  Ionen, betrachtet. Das  $i$ -te Ion habe den Ladungszustand  $Q_i$  und die Masse  $M_i$ . Der radiale Einschluss sei deutlich stärker als der axiale ( $f_r \gg f_z$ ), so dass sich die Ionen in einer Kette entlang der Fallenachse anordnen. Es handelt sich um ein eindimensionales Problem, wobei die potentielle Energie der gesamten Ionenkette dann durch folgenden Ausdruck gegeben ist:

$$V(z_1, \dots, z_N) = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N M_i \omega_{z,i}^2 z_i^2 + \frac{e^2}{8\pi\epsilon_0} \sum_{\substack{i,j=1 \\ i \neq j}}^N \frac{Q_i Q_j}{|z_i - z_j|}, \quad (2.28)$$



**Abbildung 2.33:** Theoretisch berechnete, dimensionslose axiale Ionenpositionen für Ionenketten bestehend aus einem hochgeladenen und  $n \in (1, \dots, 4)$  einfach geladenen Ionen. Gezeigt sind je die Ionenpositionen für verschiedene Ladungszustände des hochgeladenen Ions für unterschiedliche, experimentell erzeugte, Konfigurationen.

mit den Fallenfrequenzen  $\omega_{z,i} = \sqrt{c Q_i / M_i}$  eines einzelnen Ions und der Konstanten  $c = 2e\eta U_{DC} / z_0^2$  (siehe Gleichung (1.16 d) aus Kapitel 1.1.3). Der erste Term  $\frac{1}{2}c \sum_{i=1}^N Q_i z_i^2$  in Gleichung (2.28), der die Ionen-Wechselwirkung mit dem statischen, axialen Einschlusspotential der Paulfalle beschreibt, ist somit unabhängig von der Masse der Ionen. Der zweite Term aus Gleichung (2.28) steht für die gegenseitige Coulomb-Abstoßung der positiv geladenen Ionen untereinander. Damit ist  $V(z_1, \dots, z_N)$  insgesamt unabhängig von der Masse der Ionen. Die Gleichgewichtspositionen einer Ionenkette geben nur Auskunft über die Ladungszustände der beteiligten Ionen und nicht über die Element-Zusammensetzung der Kette. Die individuellen Ionen in der Kette nehmen ihre Gleichgewichtspositionen  $z_i^0$  mit  $i = \{1, \dots, N\}$  so ein, dass die potentielle Energie des Gesamtsystems minimal wird. Damit können selbige durch Lösen von

$$\left( \frac{\partial V}{\partial z_i} \right) \bigg|_{z_i=z_i^0} = 0 \quad (2.29)$$

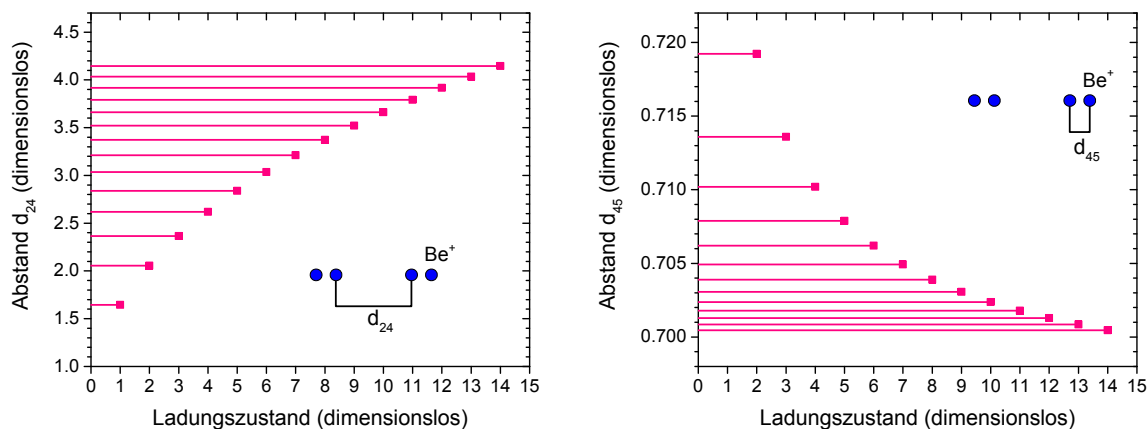
theoretisch berechnet werden. Durch Einführen der charakteristischen Länge  $l = \sqrt[3]{\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 c}}$  kann man dabei zu den dimensionslosen Gleichgewichtspositionen  $u_i = z_i^0 / l$  übergehen und erhält so, nach Gleichung (2.29), einen Satz aus  $N$  gekoppelten, algebraischen, dimensionslosen Gleichungen der Form:

$$Q_i u_i - \sum_{j=1}^{i-1} \frac{Q_i Q_j}{(u_i - u_j)^2} + \sum_{j=i+1}^N \frac{Q_i Q_j}{(u_i - u_j)^2} = 0, \quad i = 1, 2, \dots, N. \quad (2.30)$$

Der erste Term steht für die Kraft des axialen Fallenpotentials auf das  $i$ -te Ion, der zweite Term für die Coulomb-Kraft aller Ionen auf der linken Seite des  $i$ -ten Ions auf selbiges und der dritte Term für die Coulomb-Kraft aller Ionen auf der rechten Seite auf das  $i$ -te Ion.

In einer realen Paulfalle besitzen die Ionen eine von Null verschiedene Temperatur und bewegen sich somit um ihre Gleichgewichtspositionen herum. Sind die Ionen ausreichend kalt, was sicher bereits in der Nähe des Doppler-Kühllimits gilt, so kann ihre zeitabhängige Bewegung um die Gleichgewichtsposition durch  $z_i(t) = l u_i + q_i(t)$  beschrieben werden. Hierbei werden die  $q_i(t)$  als ausreichend klein angenommen, um die Linearisierung der wirkenden Kräfte zu ermöglichen [226, 227].

Das Gleichungssystem (2.30) kann bis  $N = 3$  analytisch und für eine größere Anzahl an Ionen numerisch gelöst werden. Für eine Ionenkette, ausschließlich bestehend aus einfach geladenen Ionen, wurde dies bis  $N = 10$  von [226, 228] durchgeführt. Eine experimentelle Betrachtung zu einkomponentigen Ionenketten findet man z.B. in [229]. Abbildung 2.34 fasst die berechneten dimensionslosen Ionenpositionen in Abhängigkeit des Ladungszustandes  $Q$  des ko-kristallisierten HCIs, für experimentell relevante Ionenkonfigurationen, zusammen. Man erkennt, dass sich, auch für unsymmetrische Konfigurationen, das HCI mit zunehmendem Ladungszustand der Fallenmitte annähert. Dies ist zum einen durch die immer stärker werdende Coulomb-Abstoßung der Be<sup>+</sup>-Ionen und zum anderen durch die linear mit  $Q$  skalierende Stärke der axialen potentiellen Energie eines Ions erklärbar (siehe Gleichungen



**Abbildung 2.34:** Theoretisch berechnete, dimensionslose  $\text{Be}^+$ -Ionenabstände, für die symmetrische Mischkristall-Konfiguration  $2\text{Be}^+/1\text{HCI}/2\text{Be}^+$ , in Abhängigkeit des HCI-Ladungszustandes (siehe auch Abb. 2.33). Links: Abstand  $d_{24}$  zwischen den beiden, das dunkle Ion direkt umgebenden, Kühlionen. Rechts: Abstand  $d_{45}$  zwischen zwei direkt benachbarten Kühlionen. Man erkennt, dass der Unterschied zwischen Abständen benachbarter HCI-Ladungszustände mit zunehmendem Ladungszustand des ko-kristallisierten HCIs abnimmt. Damit einhergehend steigen die Anforderungen an die experimentelle Bestimmung der axialen  $\text{Be}^+$ -Ionenpositionen.

1.16 aus Kapitel 1.1.3).

Für die Konfiguration  $2\text{Be}^+/1\text{Ar}^{13+}/2\text{Be}^+$ , die im nächsten Abschnitt zur Ladungszustands-Bestimmung verwendet wird, vergrößert sich der Abstand  $d_{24}$  zwischen den beiden innen liegenden  $\text{Be}^+$ -Ionen um ungefähr den Faktor 2.5, wenn man von einem angenommenen, einfach geladenen Ion auf der mittleren Position zu einem HCI mit  $Q = 13$  geht.

In Abbildung 2.34 sieht man die Entwicklung der Abstände  $d_{24}$  bzw.  $d_{45}$  zwischen den beiden innersten bzw. zwei benachbarten äußeren  $\text{Be}^+$ -Ionen in Abhängigkeit des HCI Ladungszustandes für die experimentell relevante  $2\text{Be}^+/1\text{Ar}^{13+}/2\text{Be}^+$  Konfiguration. Beide Abstände hängen vom Ladungszustand ab und liegen je für höhere Ladungszustände zunehmend dichter. Für die experimentelle Bestimmung des HCI Ladungszustandes ist es somit, insbesondere für höhere  $Q$ , sinnvoll alle  $\text{Be}^+$ -Ionenpositionen miteinzubeziehen. Um zusätzlich das Fehler-Budget zu minimieren wird statt einer  $\mu\text{m}/\text{Pixel}$ - eine  $\text{Pixel}/\{1\}$ -Kalibration durchgeführt, indem die Ionenpositionen einer reinen  $\text{Be}^+$ -Ionenkette mit den theoretischen, dimensionslosen Ionenpositionen dieser Kette abgeglichen werden. Die dimensionslosen Positionen haben hier die Einheit  $\{1\}$ .

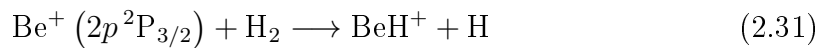
### 2.7.3 Ladungszustands-Bestimmung mittels Ionenketten

Die Bestimmung des Ladungszustandes  $Q_{\text{HCI}}$  des ko-kristallisierten HCIs durch den Vergleich zwischen experimentellen und theoretischen axialen Positionen der sichtbaren Kühlionen wird im Folgenden am Beispiel der symmetrischen Konfiguration  $2\text{Be}^+/1\text{Ar}^{13+}/2\text{Be}^+$  illustriert.

Abbildung 2.35 zeigt eine CCD-Aufnahme der gemischten Ionenkette. Zur Bestim-

mung der experimentellen axialen Positionen der fluoreszierenden Be<sup>+</sup>-Ionen wurde eine Projektion des, mit der CCD detektierten Fluoreszenzlichtes, einer Region-of-Interest um die Ionenkette auf die Fallachse projiziert. Diese Projektion ist in Abbildung 2.35 dem CCD-Bild überlagert. Gleichzeitiges Anfitten von vier Gaußfunktionen an die Projektion liefert die individuellen Peak-Positionen, die ebenfalls in Grafik 2.35 zu sehen sind. Die CCD-Aufnahmen, der 4 Be<sup>+</sup>-Ionenkette, aufgenommen nach Verlust des HCl, liefert die, im obigen Abschnitt definierte, Pixel/{1}-Kalibration. Damit können zusätzliche systematische Fehler aufgrund beobachteter Drifts der axialen Fallfrequenz über Stunden ausgeschlossen werden. Die theoretisch, auf der Grundlage von Gleichung (2.28), berechneten Be<sup>+</sup>-Ionenpositionen werden mittels dieser Kalibration in Pixel umgerechnet. Die Darstellung des Vergleichs der experimentellen und theoretischen Ionenpositionen in Abb. 2.35 erfolgt zur besseren Veranschaulichung in  $\mu\text{m}$ . Für die Bestimmung des, mit einem Satz an experimentellen Positionen am besten übereinstimmenden, Ladungszustandes wird auf den zusätzlichen, fehlerbehafteten Schritt (Fehler der experimentellen Pixel/ $\mu\text{m}$  Kalibration plus Fehler des Skalierungsfaktors  $l$  für die theoretischen Positionen) der Umrechnung in  $\mu\text{m}$  verzichtet.

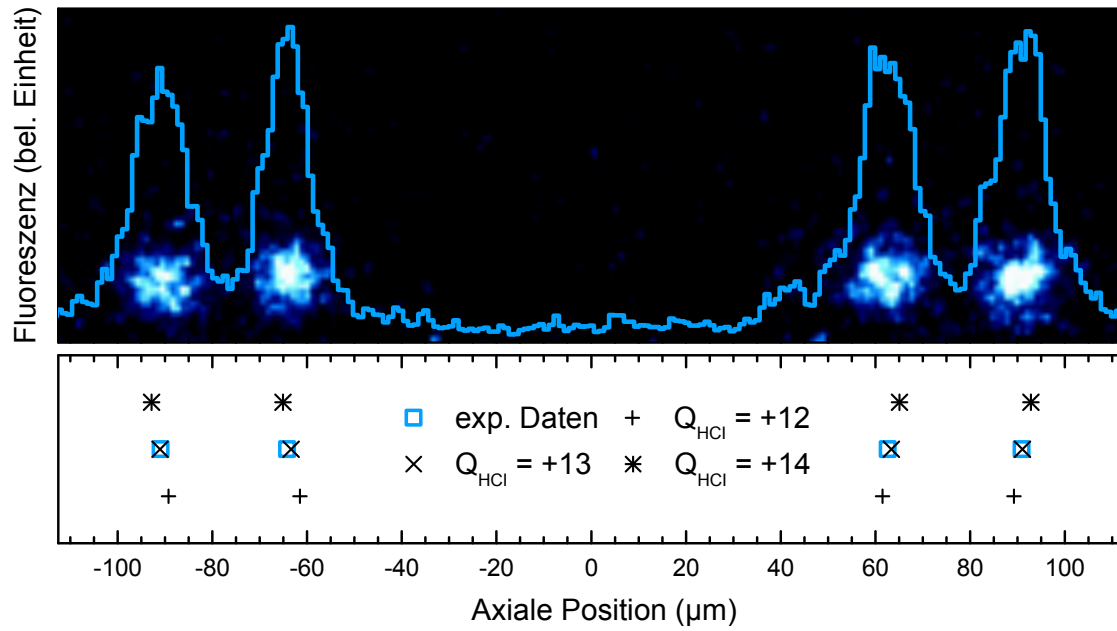
Zu der Fragestellung, ob die dunkle, große Lücke zwischen den beiden innersten Be<sup>+</sup>-Ionen aus Abb. 2.35 auch durch eine Mehrzahl an einfach geladenen Restgasionen zustande kommen könnte, sei folgendes dokumentiert: Im Gegensatz zu Raumtemperatur-Paulfallen, bei denen es, insbesondere beim Ionenladen mittels Elektronenstossionisation, zur Ko-Kristallisation diverser einfach geladener Restgasionen (Ionen von Elementen, die typischerweise in der Luft vorkommen oder durch photochemische Reaktionen gebildete Moleküliationen [230, 231]) kommen kann, sind bei einer kryogenen Paulfalle sämtliche Restgase, bis auf H<sub>2</sub>, an den Wänden adsorbiert. Damit können im vorliegenden Experiment prinzipiell nur BeH<sup>+</sup>-Ionen nach der photochemischen Reaktion



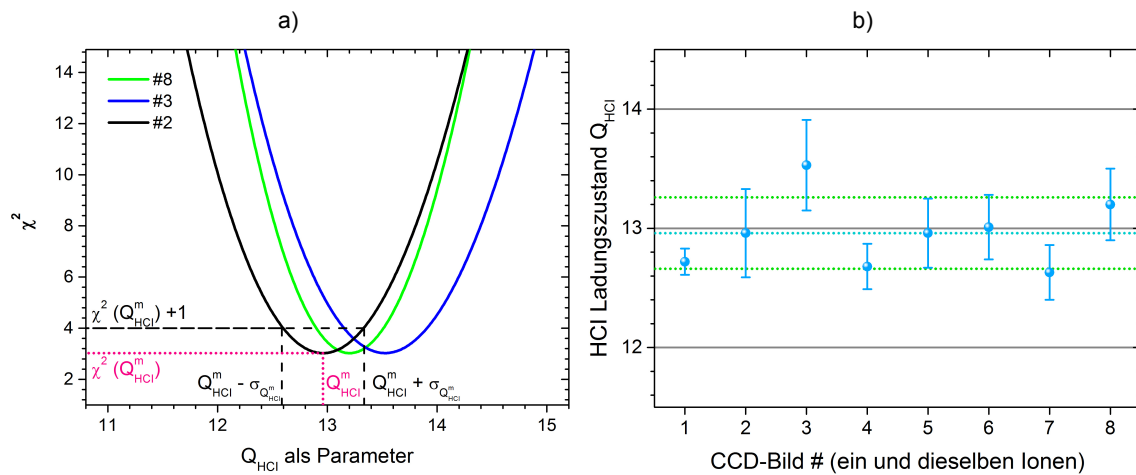
gebildet werden. Siehe [231] für eine Betrachtung der äquivalenten photochemischen Reaktion mit, in einer Paulfalle gespeicherten, Mg<sup>+</sup>-Ionen. Somit könnten prinzipiell 5 oder 6 BeH<sup>+</sup>-Ionen eine Lücke zwischen den beiden innersten Be<sup>+</sup>-Ionen erzeugen, die allerdings 8  $\mu\text{m}$  kleiner oder 5  $\mu\text{m}$  größer wäre als die in Abb. 2.35 experimentell beobachtete Größe. Eine Abweichung, die im Rahmen der experimentellen Fehler deutlich detektierbar wäre. Zusätzlich wurde die photochemische Reaktion unter den in Abb. 2.35 herrschenden experimentellen Bedingungen in reinen Kühltionenketten nicht beobachtet.

Für eine gegebene CCD-Aufnahme wurde der Ladungszustand  $Q_{\text{HCl}}$ , samt Fehler, des ko-kristallisierten HCl mit Hilfe der  $\chi^2$ -Minimierungs-Methode bestimmt. Dazu wurde der  $\chi^2$ -Wert in Abhängigkeit des Ladungszustandes als Parameter nach der Beziehung

$$\chi^2(Q_{\text{HCl}}) = \sum_{i=1}^4 \left( \frac{z_i^{\text{exp}} - z_i^{\text{theo}}(Q_{\text{HCl}})}{\sigma_{z_i^{\text{exp}}}} \right)^2 \quad (2.32)$$



**Abbildung 2.35:** Oben: Überlagerung eines CCD-Bildes der symmetrischen Konfiguration, bei der 4  $Be^+$ -Ionen ein HCl sympathetisch kühlen, mit der Projektion der 313 nm Fluoreszenz auf die Fallenachse. Aufgenommen für eine experimentell bestimmte axiale Fallenfrequenz eines einzelnen  $Be^+$ -Ions von  $\omega_z = 2\pi \times 112(1)$  kHz. Unten: Vergleich der experimentellen Peak-Positionen der  $Be^+$ -Ionenfluoreszenz (blaue Quadrate) mit theoretisch berechneten Ionenpositionen (×, +, \*) für verschiedenen angenommenen, benachbarte Ladungszustände  $Q_{HCl}$  des ko-kristallisierten HClIs.



**Abbildung 2.36:** In a) sieht man beispielhaft die Bestimmung von  $\chi^2$  nach Gleichung (2.32) in Abhängigkeit des Parameters  $Q_{HCl}$  für drei ausgewählte CCD-Bilder. Für die Berechnung wurden die experimentellen Fehler der Einzelpositionen skaliert (hier nicht zu sehen). Zusätzlich wird hier die Bestimmung des, zu einem CCD-Bild gehörenden, wahrscheinlichsten Wertes von  $Q_{HCl}$  zusammen mit dessen Fehler illustriert. In Abbildung b) sind die so bestimmten Werte für den Ladungszustand des in der Konfiguration  $2Be^+/1Ar^{13+}/2Be^+$  ko-kristallisierten HClIs für 8 verschiedene CCD-Aufnahmen ein und desselben Ionenkristalls zu sehen.



berechnet. Wobei  $z_i^{exp}$  die experimentellen Peak-Positionen der Be<sup>+</sup>-Ionenfluoreszenz (hier dimensionslos) und  $\sigma_{z_i^{exp}}$  die experimentellen Fehler, bestehend aus denen der Peak-Positionen und der Pixel/{1} Kalibration, beschreibt.  $z_i^{theo}(Q_{HCI})$  steht für die theoretischen Ionenpositionen, die für den jeweiligen angenommenen Ladungszustand berechnet wurden. Da die hier diskutierten CCD-Bilder mit Variante A der Paulfallenelektronik aufgenommen wurden, lag entlang der Paulfallenachse, in ihrer Stärke zunehmende, axiale Excess-Mikrobewegung vor. Dies führt zu verschiedenen Streuraten und damit axialen Lichtdruckkräften auf die individuellen Be<sup>+</sup>-Ionen einer Kette. Damit sind die Fehler aus dem Anfitten der Peak-Positionen zu niedrig angenommen. Diese wurden solange skaliert, bis das  $\chi^2$ -Minimum in der Nähe von 3 lag, um entsprechend die Fehler für die  $Q_{HCI}$ -Werte einzelner CCD-Aufnahmen angeben zu können. Das Vorgehen zur Bestimmung des HCI Ladungszustandes nach der  $\chi^2$ -Minimierungs-Methode ist in Abbildung 2.36 a) beispielhaft für drei verschiedene CCD-Aufnahmen ein und derselben gemischten Ionenkette illustriert. Bildung von Mittelwert und Standardabweichung von insgesamt 8 CCD-Aufnahmen (siehe Abb. 2.36 b)), der in Abb. 2.35 gezeigten Ionenkette, liefert als Ergebnis  $Q_{HCI} = (12.96 \pm 0.30)$ , das in Übereinstimmung mit dem für Ar<sup>13+</sup>-Ionen zu erwartenden Wert ist.

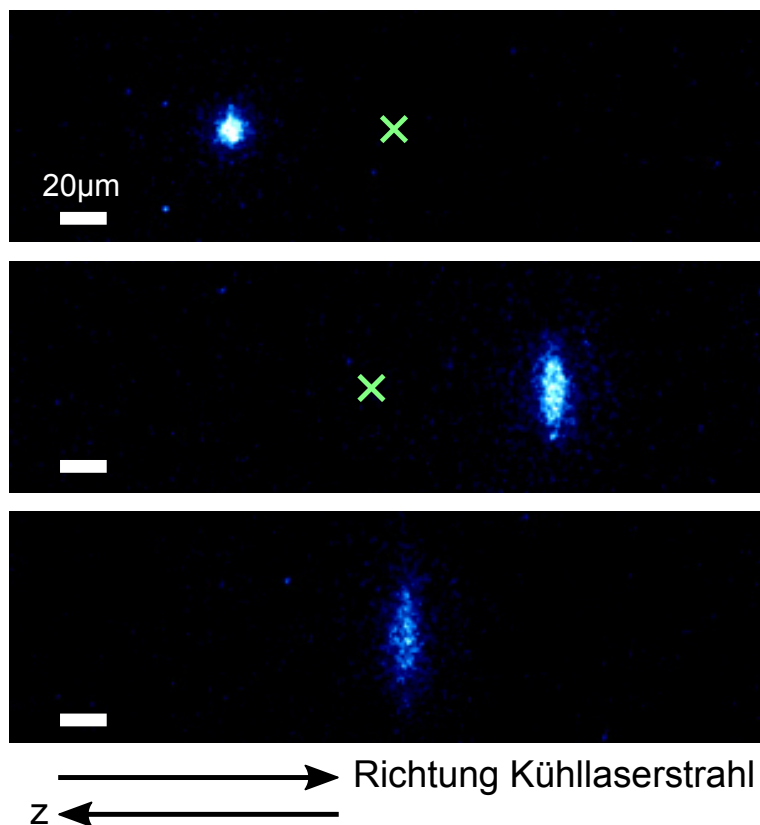
#### 2.7.4 Zwei-Ionen-Mischkristalle

Zwei-Ionen-Mischkristalle sind von besonderem Interesse für die Applikation von Quantenlogik-Spektroskopie [25] auf Spektroskopie-Ionen, die nur sympathetisch gekühlt werden können.

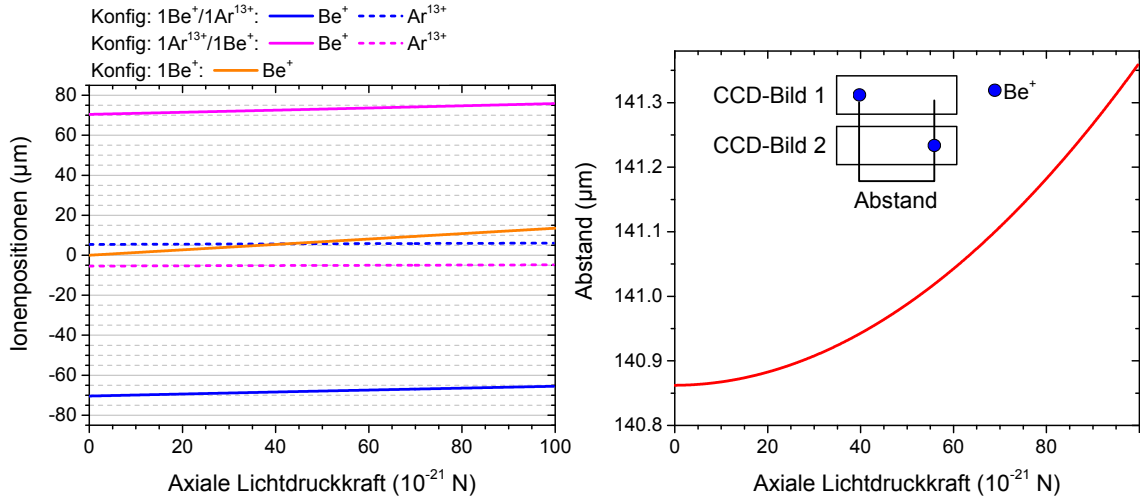
Abbildung 2.37 zeigt eine CCD-Bilderserie zu einem Zwei-Ionen-Mischkristall, bestehend aus einem einzelnen Ar<sup>13+</sup>-Ion, das sympathetisch von einem einzelnen Be<sup>+</sup>-Ion gekühlt wird. Es ist stets der gleiche CCD-Bildausschnitt zu sehen. Bei dem ersten Bild handelt es sich um die ursprüngliche Konfiguration, die nach der zu Beginn dieses Kapitels beschriebenen Methode erzeugt wurde. Die nachträglich theoretisch berechnete Position des Ar<sup>13+</sup>-Ions ist je mit einem grünen Kreuz markiert. Für das nächste CCD-Bild wurde ein kleiner Spannungspuls an die Elektrode EM1 angelegt, so dass es zu einem Konfigurationswechsel der Ionenkette kam. Nach ca. 4 min mit wiederholten, induzierten Konfigurationswechseln kam es zum Verlust des HCIs aus der Falle, womit sich das verbleibende, einzelne Be<sup>+</sup>-Ion in der Nähe der Fallenmitte anordnete, leicht ausgelenkt in Richtung Wellenzahlvektor des Kühllasers aufgrund der resultierenden Lichtdruckkraft. Für die oberen CCD-Bilder wurde zusätzlich der radiale Seitenarm des Kühllasers verwendet (siehe Abb. 1.39 aus Kapitel 1.5.3, deutlich niedrigere Intensität als im axialen Kühllaserstrahl). In den beiden unteren CCD-Bildern ist der Effekt asymmetrischer Be<sup>+</sup>-Iontemperaturen erkennbar, der durch eine asymmetrische Abweichung des Fluoreszenzbildes von der Kreisform charakterisiert ist [232]. Zusätzlich sind die Formen des Fluoreszenzbildes bei der oberen und mittleren CCD-Aufnahme verschieden, was auf ein unterschiedliches Verhältnis von Heiz- zu Kühlraten zwischen den beiden Aufnahmen deutet. Dies ist auch insofern zu erwarten, da die Aufnahmen mit der Variante A der Paulfallenelektroden aufgenommen wurde. Hier lag axiale Excess-Mikrobewegung entlang der Fallenachse

vor, deren Stärke in  $-z$ -Richtung zunahm. Dies führte zu inhomogenen Kühl- und Heizraten entlang der Fallennachse, da die Kühllaser-Parameter einheitlich festgelegt waren.

Des Weiteren ist in Abbildung 2.38 der Effekt der axialen, auf die  $\text{Be}^+$ -Ionen wirkenden Lichtdruckkraft, bedingt durch die Verwendung eines einzelnen axialen Kühllaserstrahls, verdeutlicht. Der Abstand zwischen dem  $\text{Be}^+$ -Ion einer der beiden Mischkristall-Konfigurationen und dem einzelnen, nach HCl-Verlust übrig bleibenden,  $\text{Be}^+$ -Ion ist abhängig von der betrachteten Konfiguration des Zwei-Ionen-Mischkristalls. Dies liegt, wie in Abbildung 2.38 links beispielhaft für eine axiale Fallenfrequenz von  $\omega_z/(2\pi) = 112(1)$  kHz berechnet, an der Tatsache, dass ein einzelnes  $\text{Be}^+$ -Ion in seinem relativ seichten, axialen Potential durch die selbe Lichtdruckkraft wesentlich stärker verschoben werden kann als ein  $\text{Be}^+$ -Ion, das auf einer der beiden Seiten eines  $\text{Ar}^{13+}$ -Ions sitzt. In den beiden letzteren Fällen wird das  $\text{Be}^+$ -Ion entweder gegen das Coulomb-Potential des HClIs gedrückt oder gegen den weiter außen liegenden, und damit stärkeren, Teil des axialen Fallenpotentials. Für



**Abbildung 2.37:** CCD-Bilderfolge eines Zwei-Ionen-Mischkristalls (Oben, Mitte) bzw. eines einzelnen  $\text{Be}^+$ -Ions (Unten). Die grünen Kreuze markieren die theoretischen Positionen des kokristallisierten  $\text{Ar}^{13+}$ -Ions. Die axiale Fallenfrequenz wurde experimentell zu  $\omega_z/(2\pi) = 112(1)$  kHz bestimmt. Weiße Skalen-Rechtecke entsprechen je einer Breite von  $20\text{ }\mu\text{m}$ . Die Aufnahmen wurden mit Variante A von Abbildungssystem und Paulfallenelektronik aufgenommen.



**Abbildung 2.38:** Links: Numerisch berechnete Ionenpositionen in Abhängigkeit der axialen Lichtdruckkraft durch den Kühllaser für die nach Abb. 2.37 relevanten Kristall-Konfigurationen. Die theoretische Berechnung erfolgte für eine axiale Fallenfrequenz von  $\omega_z/(2\pi) = 112 \text{ kHz}$ . Da bei gleicher axialer Lichtdruckkraft ein einzelnes  $\text{Be}^+$ -Ion stärker aus der Fallenmitte verschoben wird als ein  $\text{Be}^+$ -Ion eines Zwei-Ionen-Mischkristalls ergeben sich verschieden große Abstände des jeweiligen  $\text{Be}^+$ -Ions zur  $\text{Be}^+$ -Position ohne HCI. Rechts: Berechneter Abstand zwischen den  $\text{Be}^+$ -Ionen der beiden möglichen Mischkristall-Konfigurationen in Abhängigkeit der axialen Lichtdruckkraft.

die numerische Berechnung der Ionenpositionen, unter Berücksichtigung der axialen Lichtdruckkraft, wurde das, mit der konstanten Lichtdruckkraft verbundene, in  $z$  lineare Potential selektiv für die  $\text{Be}^+$ -Ionen in Gleichung (2.28) eingefügt.

Zur Bestimmung des Ladungszustandes des ko-kristallisierten HCIs kann der Abstand zwischen den  $\text{Be}^+$ -Ionenpositionen zweier CCD-Bilder der verschiedenen Ionenkonfigurationen verwendet werden. Wie in Abbildung 2.38 rechts illustriert, variiert dieser über den gesamten Bereich experimentell möglicher, axialer Lichtdruckkräfte weniger als  $0.5 \mu\text{m}$  (im Bereich typischer axialer Fallenfrequenzen). Die Fallenfrequenzen können auch bewusst so hoch gewählt werden, dass das Ausbilden einer Ionenkette möglich bleibt, der Einfluss der Lichtdruckkraft jedoch minimiert wird.

### 2.7.5 Eigenfrequenzen gemischter Ionenketten

Da die Gleichgewichts-Positionen der kalten, fluoreszierenden Kühllionen in gemischten Ionenketten ausschließlich von der Ladung, und nicht der Masse, des ko-kristallisierten HCIs abhängen, wurden zusätzlich Anregungen der niedrigsten Eigenfrequenz gemischter Ionenketten aufgenommen, um zusätzlich eine Aussage über das  $Q/M$ -Verhältnis des sympathetisch gekühlten HCIs treffen zu können.

Bei der Betrachtung der Bewegung  $N$  individueller Ionen einer Kette, um ihre Gleichgewichtspositionen  $\vec{z}^0 = (z_1^0, \dots, z_N^0)$ , kann man, wie auf Seite 159 bereits eingeführt, die zeitabhängigen, axialen Positionen in der Form  $\vec{z}(t) = \vec{z}^0 + \vec{q}(t)$  schreiben. Die laser-gekühlten  $\text{Be}^+$ -Ionen in diesem Experiment sollten minimal Tempe-

raturen beim Doppler-Kühllimit besitzen und liegen für die verwendeten Laser- und Fallenparameter typischerweise bei Temperaturen in der Größenordnung von 5 mK. Dies resultiert bei einer axialen Fallenfrequenz von 91 kHz für ein einzelnes Kühlion in Bewegungsamplituden von 3.8  $\mu\text{m}$ . Verglichen mit dem Abstand von 45.5  $\mu\text{m}$  zwischen zwei  $\text{Be}^+$ -Ionen bei der gleichen Fallenfrequenz kann die Bewegungsamplitude als klein angenommen werden. Damit kann man den Grenzfall kleiner axialer (hier wird nur der 1-dim. axiale Fall betrachtet) Oszillationen  $\vec{q}(t)$  der einzelnen Ionen um ihre Gleichgewichtsposition annehmen und damit die gesamte potentielle Energie  $V(\vec{z}(t))$  der Ionenkette, aus Gleichung (2.28), in eine mehrdimensionale Taylorreihe  $T V(\vec{z}(t); \vec{z}^0)$ , bis zur zweiten Ordnung in  $\vec{z}(t)$ , um ihre Gleichgewichtsposition  $\vec{z}^0$  entwickeln:

$$V \approx V(\vec{z}^0) + \sum_{i=1}^N \left( \frac{\partial V}{\partial z_i} \right) \Big|_{z_i^0} (z_i - z_i^0) + \frac{1}{2} \sum_{j=1}^N \sum_{i=1}^N \frac{\partial^2 V}{\partial z_j \partial z_i} \Big|_{z_i^0} (z_i - z_i^0) (z_j - z_j^0) .$$

Da die erste Ableitung der potentiellen Energie, an der Stelle der Gleichgewichtspositionen, per Definition Null ist (siehe Gleichung (2.29)), bleibt nur noch die mehrdimensionale zweite Ableitung der potentiellen Energie in der Taylorreihen-Entwicklung als relevanter Term übrig. Mit  $q_i = z_i - z_i^0$  sieht man, dass die Lagrangefunktion  $\mathcal{L} = T - V$ , für die kleinen Oszillationen der Ionen in der Kette um ihre Gleichgewichtspositionen, als

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2} \dot{\vec{q}}^T \tilde{M} \dot{\vec{q}} - \frac{1}{2} \vec{q}^T \tilde{C} \vec{q} \quad (2.33)$$

geschrieben werden kann. Hierbei steht  $\tilde{M}$  für die Massen-Matrix mit den Einträgen  $M_{i,j} = \delta_{i,j} M_i$ , während die Einträge der Federkonstanten-Matrix  $\tilde{C}$  durch  $C_{i,j} = \frac{\partial^2 V}{\partial z_i \partial z_j} \Big|_{z_i^0}$  gegeben sind. Die zugehörigen  $N$  Bewegungsgleichungen folgen aus der Euler-Lagrange-Gleichung zu

$$\tilde{M} \ddot{\vec{q}} + \tilde{C} \vec{q} = 0 , \quad (2.34)$$

mit der bekannten oszillatorischen Lösung

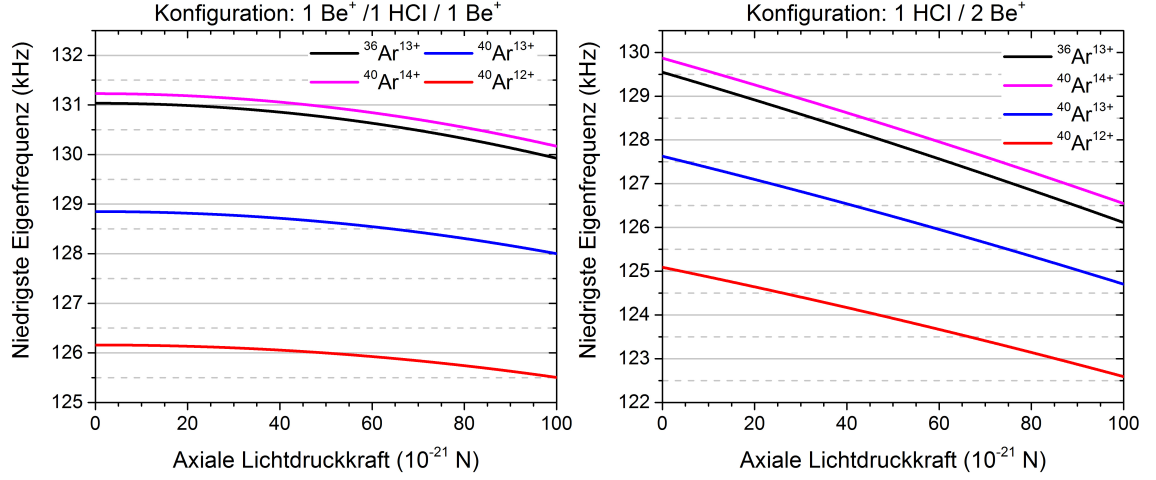
$$\vec{q}(t) = \text{Re} \left[ A \vec{\nu} \exp^{\omega t + \varphi} \right] . \quad (2.35)$$

Einsetzen dieser Lösung in Gleichung (2.34) führt zu folgendem Eigenwertproblem

$$\left( \tilde{M}^{-1} \tilde{C} \vec{\nu} - \omega^2 \vec{\nu} \right) = 0 . \quad (2.36)$$

Eine numerische Lösung des Eigenwertproblems (z.B. wie hier in Mathematica) liefert die  $N$  Eigenfrequenzen  $\omega^{(p)}$  des Systems mit  $p \in 1, \dots, N$  und ihre entsprechenden, normierten Eigenvektoren  $\vec{\nu}^{(p)}$ . Die Berücksichtigung des nächsten Terms in der Taylorreihen-Entwicklung der potentiellen Energie führt zur Modenkopplung, die nach [233] jedoch in der Regel klein ist und hier vernachlässigt wird.

Bei der Beschreibung der potentiellen Gesamtenergie der Ionenkette nach Gleichung



**Abbildung 2.39:** Links: Numerisch berechnete, niedrigste Eigenfrequenzen  $f^{(1)} = \omega^{(1)}/(2\pi)$  der  $1\text{Be}^+/1\text{HCI}/1\text{Be}^+$  Ionenketten-Konfiguration, für verschiedene  $Q/M$ -Verhältnisse des ko-kristallisierten HCIs, in Abhängigkeit der axialen Lichtdruckkraft auf die  $\text{Be}^+$ -Ionen. Es wurde eine axiale Fallenfrequenz von  $\omega_z/(2\pi) = 91\text{ kHz}$  für ein einzelnes  $\text{Be}^+$ -Ion angenommen. Rechts: Wie links, nur für die  $1\text{HCI}/2\text{Be}^+$  Ionenketten-Konfiguration. Für eine verschwindende axiale Lichtdruckkraft können die Eigenfrequenzen auf die axiale Fallenfrequenz eines einzelnen Kühlions normiert werden.

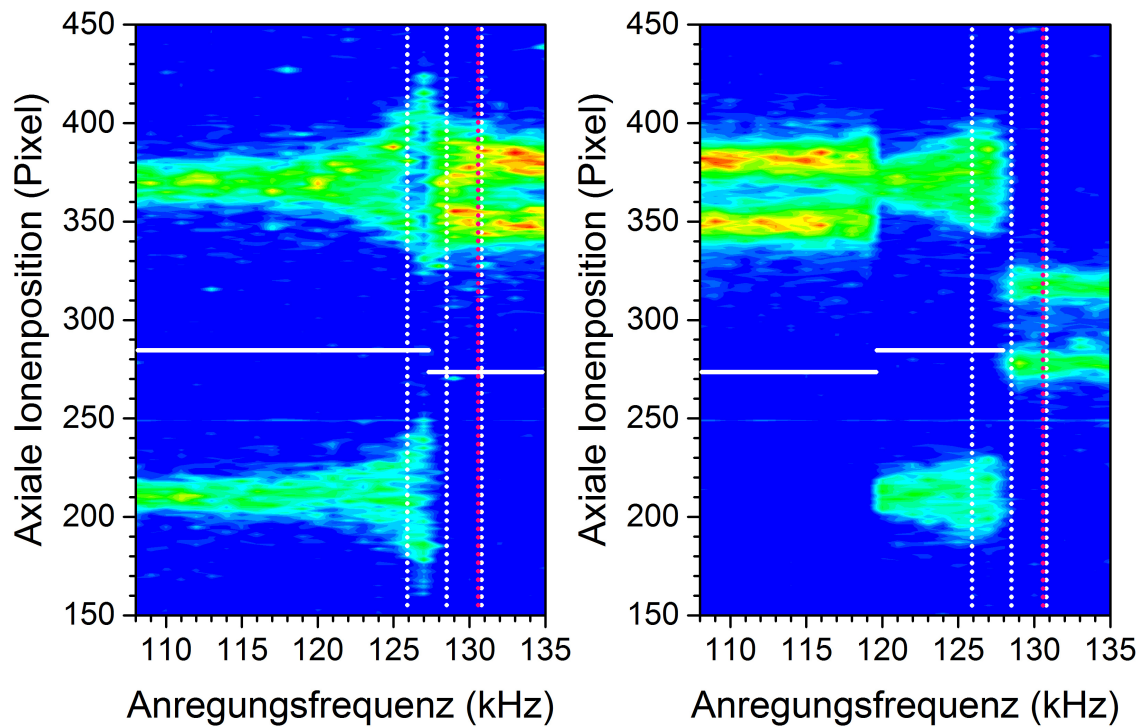
(2.28) werden nur die Coulomb-Abstoßung der Ionen untereinander und ihre jeweilige potentielle Energie im axialen harmonischen Fallenpotential berücksichtigt, wie es auch in den Arbeiten [48, 227, 230] der Fall war. Zusätzlich muss für die Experimente dieser Arbeit jedoch noch die, nur auf die Kühlionen wirkende, axiale Lichtdruckkraft (siehe Gleichung (1.29) aus Kapitel 1.2.1 für eine Definition) berücksichtigt werden. Sei  $F_z^{\text{Licht}} z_i$  die Projektion der Lichtdruckkraft des Kühl lasers auf die Fallenachse und  $Q_K$  der Ladungszustand des Kühlions (hier  $Q_K = 1$ ), dann erhält man

$$V(\vec{z}) = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N M_i \omega_{z,i}^2 z_i^2 + \frac{e^2}{8\pi\epsilon_0} \sum_{\substack{i,j=1 \\ i \neq j}}^N \frac{Q_i Q_j}{|z_i - z_j|} - \sum_{i=1}^N F_z^{\text{Licht}} z_i \delta_{Q_i, Q_K}, \quad (2.37)$$

als modifizierte Form der gesamten potentiellen Energie des Systems.

In Abbildung 2.39 sieht man die, nach Gleichungen (2.36) und (2.37) berechnete, Abhängigkeit der niedrigsten Eigenfrequenz  $f^{(1)} = \omega^{(1)}/(2\pi)$  einer Ionenkette, bestehend aus 2  $^9\text{Be}^+$ -Ionen und einem HCI, von der axialen Lichtdruckkraft, der Konfiguration der Kette sowie dem  $Q/M$ -Verhältnis des ko-kristallisierten HCIs. Man erkennt, dass alle drei Parameter einen, nicht zu vernachlässigenden, Einfluss auf die Eigenfrequenz des Systems haben.

Die, numerisch berechenbaren, Eigenfrequenzen des schwingungsfähigen Systems der Ionenkette können experimentell durch das Anlegen elektrischer Wechselfelder angeregt werden. Dazu wurde eine, mit einem Frequenzgenerator erzeugte, RF-Spannung an den DC-Eingang für eine der 20 mm langen Aussenelektroden der



**Abbildung 2.40:** Resonanzanregungen der niedrigsten axialen Normalmode einer gemischten Ionenkette, bestehend aus zwei  $\text{Be}^+$ -Ionen und einem  $^{40}\text{Ar}^{13+}$ -Ion. Links und rechts handelt es sich um ein und dieselben Ionen. Es sind Konfigurationswechsel zu beobachten. Rechts: Am Ende der Resonanzanregung kommt es zum HCl-Verlust und es verbleiben die beiden  $\text{Be}^+$ -Ionen in der Falle. Die axiale Fallenfrequenz eines einzelnen  $\text{Be}^+$ -Ions wurde zu  $91(1)$  kHz bestimmt. Die Spannungsamplitude der Anregung war für die linke Grafik mit  $300$  mV um den Faktor  $1.5$  größer als für die Aufnahmen der rechten Grafik. Die horizontalen, durchgezogenen, weißen Linien indizieren die jeweiligen Positionen eines ko-kristallisierten, 13-fach geladenen Ions. Die vertikalen, gepunkteten, weißen Linien markieren die Frequenzen der theoretisch berechneten niedrigsten Normalmoden der  $1\text{Be}^+/1^{40}\text{Ar}^{Q_{\text{HCl}}}/1\text{Be}^+$  Ionenketten-Konfiguration für verschiedene Ladungszustände des hochgeladenen  $^{40}\text{Ar}$ -Ions (von links nach rechts:  $Q_{\text{HCl}} = +12$ ,  $Q_{\text{HCl}} = +13$ ,  $Q_{\text{HCl}} = +14$ ). Die vertikale, gepunktete, magentafarbene Linie markiert die, theoretisch berechnete, Frequenz der gleichen Konfiguration für  $^{36}\text{Ar}^{13+}$  als HCl.

Hauptfalle (siehe Abb. 1.2 aus Kapitel 1.1.2) angelegt. Anschließend wurde die Frequenz der Wechselspannung schrittweise erhöht und bei jedem Schritt ein CCD-Bild einer bestimmten, gemischten Ionenkette aufgenommen. Im Auswerteschritt wird die Fluoreszenz der Ionenkette auf die Fallenachse projiziert und in Abhängigkeit der Frequenz der angelegten Wechselspannung als Intensitätsmatrix dargestellt. In Abbildung 2.40 werden die Ergebnisse eines beispielhaften Frequenz-Scans für eine Ionenkette, bestehend aus zwei  $\text{Be}^+$ -Ionen und einem ko-kristallisierten HCl, gezeigt.

Die räumliche Information des CCD-Bildes ist, für den Vergleich von theoretisch berechneten Eigenfrequenzen mit experimentell beobachteten, im vorliegenden Fall unerlässlich. Im Gegensatz zur Anregung der Eigenfrequenzen einer einkom-

ponentigen Ionenkette bzw. eines Zwei-Ionen-Mischkristalls ohne resultierende Lichtdruckkraft, bei denen die Eigenfrequenzen unabhängig von der Konfiguration der Ionenkette sind.

In Abbildung 2.40 links beginnt der Scan-Bereich der externen Anregungsfrequenz bei 108 kHz und man erkennt deutlich die Fluoreszenz der beiden äußeren Be<sup>+</sup>-Ionen, die ein HCl umgeben. Bei Annäherung an die Eigenfrequenz (und damit Resonanzfrequenz) der betrachteten Ionenketten-Konfiguration wächst die axiale Bewegungsamplitude der beiden Be<sup>+</sup>-Ionen immer stärker an. Dies wird sichtbar durch eine verstärkte axiale Verschmierung der, auf die CCD abgebildeten, 313 nm-Fluoreszenz. In der für Abb. 2.40 gewählten Darstellung ist die transversale Ausdehnung der Be<sup>+</sup>-Ionen-Fluoreszenz, die sich bei Annäherung an die Eigenfrequenz kaum ausdehnt, nicht zu sehen.

Bei einer Anregungsfrequenz von 127 kHz kommt es zum Konfigurationswechsel der Ionenkette, von 1Be<sup>+</sup>/1HCl/1Be<sup>+</sup> nach 1HCl/2Be<sup>+</sup>. Man erkennt, dass die axiale Ausdehnung der Fluoreszenz hier ebenfalls erhöht ist, wenn auch schwächer als bei der ursprünglichen Konfiguration. Die eingestellte Spannungsamplitude für das anregende, elektrische Wechselfeld betrug hier 300 mV, wird allerdings noch durch den Tiefpassfilter des DC-Eingangs abgeschwächt. Es handelt sich bei der, durch ein elektrisches Wechselfeld angeregten, Ionenkette quasi um einen gedämpften (Laserkühlung zur Verringerung der sekulären axialen Bewegungsamplitude), getriebenen harmonischen Oszillator. Ist die Anregung im Vergleich zur Dämpfung sehr groß, wird den einzelnen Ionen genügend Energie für einen Konfigurationswechsel zugeführt. Daher wurde die Amplitude der Anregungsspannung für Abb. 2.40 rechts um den Faktor 1.5 verringert. Hier erkennt man, bei Annäherung an die Eigenfrequenz, einen flacheren (fast linearen) Anstieg der Bewegungsamplitude, im Gegensatz zu dem stärker, Lorentz-förmig wachsenden Anstieg in Abb. 2.40 links.

Aus den Positionen der beiden, nach HCl-Verlust übrig bleibenden, Be<sup>+</sup>-Ionen, im Vergleich zu ihren Positionen in der gemischten, vorherigen Ionenkette, kann die axiale Laserdruckkraft zu ca.  $6.4 \times 10^{-20}$  N bestimmt werden. Die entsprechenden, theoretisch berechneten Eigenfrequenzen der 1Be<sup>+</sup>/1HCl/1Be<sup>+</sup>-Ionenketten-Konfiguration sind, für verschiedene  $Q/M$ -Verhältnisse des ko-kristallisierten HCl in Abb. 2.40 eingetragen. Es handelt sich bei dem ko-kristallisierten HCl, wie aufgrund der Ionenpositionen und dem Ionenselektionsprozess nach Extraktion aus der EBIT, erwartet, um <sup>40</sup>Ar<sup>13+</sup>. Denn die Anregung der 1Be<sup>+</sup>/1HCl/1Be<sup>+</sup>-Ionenketten-Konfiguration passt zu der numerisch berechneten Eigenfrequenz  $f^{(1)}$  von 128.5 kHz für <sup>40</sup>Ar<sup>13+</sup> und in Abb. 2.40 links ist die Konfiguration nach der Umordnung der Ionenpositionen in der Kette angeregt, aber nicht so stark angeregt, dass die Eigenfrequenz, wie für <sup>36</sup>Ar<sup>13+</sup> berechnet, bei 127.4 kHz liegen würde. Vielmehr passt die Stärke der Anregung nach dem Konfigurationswechsel zu einer Eigenfrequenz von 125.8 kHz für <sup>40</sup>Ar<sup>13+</sup> als ko-kristallisiertes HCl.

## 2.8 HCI-Lebensdauer und Vakuumdruckabschätzung

### 2.8.1 Ladungsaustausch als HCI-Verlustmechanismus

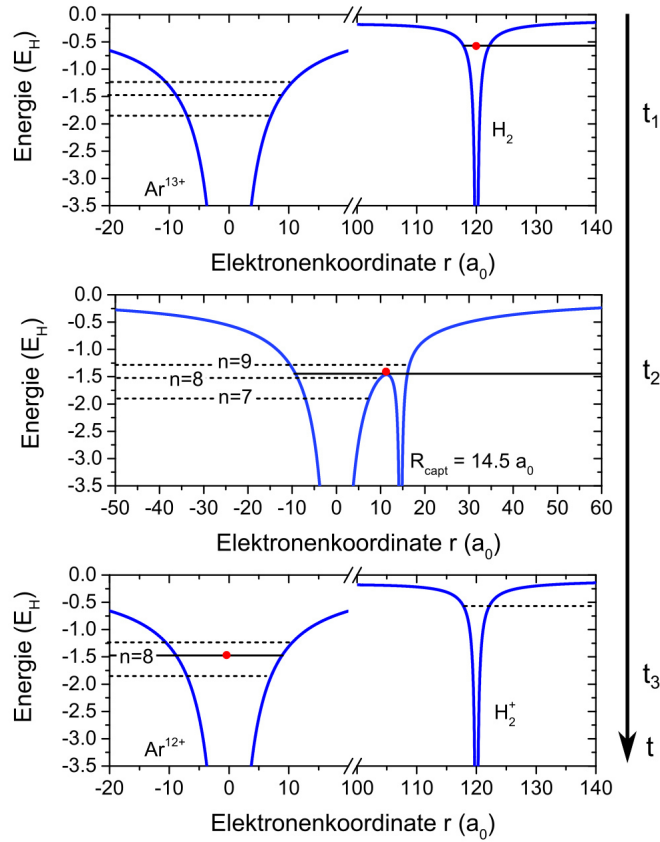
Um abschätzen zu können, ob es sich beim Ladungsaustausch der, im  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall implantierten, HCIs mit neutralen Restgas-Teilchen um einen Verlustmechanismus für HCIs aus der Paulfalle handelt, wird die typische kinetische Energie der HCIs nach dem Ladungsaustausch bestimmt und mit den experimentellen Stärken des Paulfallen-Potentials verglichen.

Die  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen ordnen sich entlang der Fallachse an und können als anfänglich ruhend angenommen werden. Durch die kryogene Fallenumgebung bei 8 K ist davon auszugehen, dass als Stoßpartner hauptsächlich  $\text{H}_2$ -Moleküle zur Verfügung stehen, da alle übrigen Restgase bei diesen Temperaturen an Kälteschilden oder Fallenelektroden adsorbiert sind [234]. Diese bewegen sich mit thermischen mittleren Geschwindigkeiten der Größenordnung  $v_0 = 290 \text{ m s}^{-1}$  ( $E_0 = 0.88 \text{ meV}$ ). Der Einfang eines einzelnen  $e^-$  vom  $\text{H}_2$ -Molekül durch das HCI kann hier (im Gegensatz zum gleichzeitigen Einfang zweier Elektronen) als der dominante Prozess angesehen werden [235]. Ladungsaustausch wird im Folgenden als atomarer Stoßprozess (engl. charge exchange (CX); auch Ladungstransfer oder Elektroneneinfang genannt) zwischen einem  $Q$ -fach geladenen Ion  $\text{A}^{Q+}$  und einem neutralen Atom/Molekül B gesehen, bei dem ein Elektron des anfänglich neutralen Teilchens zu einem gebundenen Zustand  $(n,l)$  im Ion wechselt. Die entsprechende Reaktionsgleichung mit dem Projektil B und dem Target-HCI  $\text{A}^{Q+1}$  lautet:



Der kritische internukleare Abstand  $R_{\text{capt}}$  zwischen Target-Ion und Projektil-Molekül, ab dem Ladungsaustausch möglich wird, kann mit Hilfe des klassischen Over-the-Barrier Modells, vorhergesagt werden [236–238]. Eine schematische Illustration des Einelektroneneinfangprozesses, nach dem klassischen Over-the-Barrier Modell, am Beispiel der Reaktion  $\text{H}_2 + \text{Ar}^{13+}$  findet sich in Abbildung 2.41. Man kann erwarten, dass es sich bei dem Ladungsaustausch zwischen molekularem Wasserstoff und HCIs um eine exotherme Reaktion handelt, in dem Sinne, dass die Bindungsenergie  $|I_{\text{HCI}}|$  nach dem Stoß größer als diejenige ( $|I_B|$ ) vor dem Stoß ist. Dies liegt darin begründet, dass das vom HCI eingefangene  $e^-$  hier wesentlich stärker gebunden ist als im leichten, neutralen Projektil. Des Weiteren werden Elektronen von neutralen Teilchen typischerweise in hochenergetische Zustände  $(n,l)$  der HCIs eingefangen, so dass die Gesamtheit aus Kern und Elektronenhülle des HCIs vor dem Ladungsaustausch als Punktladung, entsprechend dem Ladungszustand  $Q$  des HCIs, betrachtet werden kann. Ausgangspunkt des klassischen Over-the-Barrier Modells ist folgende Überlegung: Nähert sich das neutrale Projektil-Teilchen dem hochgeladenen Ion, dann bewegt sich das Valenzelektron von B, mit Elektronenkoordinate  $r$ , in einem effektiven, vom Kernabstand  $R$  zwischen Target und Projektil abhängenden, Potential  $V(r, R)$ . Dieses ergibt sich als Superposition der Coulomb-Potentiale beider Stoßpartner. Zudem verringert sich aufgrund des Stark-Effektes die Bindungsenergie des Valenzelektrons im Projektil-Molekül durch das E-Feld des





**Abbildung 2.41:** Schematische Illustration eines Einelektroneneinfangprozesses, nach dem klassischen Over-the-Barrier Modell, am Beispiel der Reaktion  $H_2 + Ar^{13+}$ . Es wird, für ausgewählte Schritte des Elektroneneinfangprozesses, je die potentielle Energie  $E_p(r, R)$  des Elektrons im Gesamtsystem für verschiedene internukleare Abstände gezeigt. Horizontale schwarze Linien (gestrichelt: unbesetzt, durchgezogen: besetzt) stehen für die Energieniveaus von Target-Ion und Projektil-Molekül bzw. für die Energieniveaus des Quasi-Moleküls für  $R \leq R_{capt}$ . Der rote Kreis steht für das anfänglich äußerste Valenzelektron des  $H_2$ -Moleküls.  $E_H$  bezeichnet die Hartree-Energie  $E_H$  mit ca. 27.2 eV und  $a_0$  den Bohrschen Radius mit ca. 0.53 Å. Inspiriert von [238].

HCIs. Anschaulich (siehe Abb. 2.41) verformt sich das Coulomb-Potential des neutralen Stoßpartners mit zunehmender Annäherung, so dass sich ab einem bestimmten Kernabstand  $R_{capt}$  ein transientes Quasi-Molekül bilden kann. Hier hat sich die Potential-Barriere auf ein Niveau verringert, die gerade der lokal reduzierten Bindungsenergie  $|I'_B|$  des Projektil-Moleküls entspricht (Abb. 2.41 Mitte). Das Elektron besetzt nun höher liegende  $(n, l)$  Zustände des HCIs, die es auch nicht mehr verlässt, da der Phasenraum hier wesentlich größer ist als in dem leichten Projektil. Nach dem Elektroneneinfang durch das HCI wirkt zwischen  $A^{(Q-1)+}$  und  $B^+$  plötzlich ein repulsives Potential aufgrund der Coulomb-Abstoßung. Dadurch gewinnt das HCI an kinetischer Energie und kann, wenn diese entsprechend groß ist, die Paulfalle verlassen. Auch wenn dies nicht der Fall wäre, so stünde das umgeladene HCI zumin-

dest nicht mehr für die ursprünglich geplante Spektroskopie zur Verfügung. Um eine Abschätzung der kinetischen Energie des HCIs nach dem Ladungstransfer durchführen zu können, muss der kritische Kernabstand zwischen den beiden Stoßpartnern, ab dem das  $e^-$  auf das HCl transferiert wird, quantitativ bestimmt werden. Die folgenden Betrachtungen erfolgen in atomaren Einheiten (Länge in Einheiten von  $a_0$ , Energien in Einheiten der Hartree-Energie  $E_H$ ), die Beziehung für  $R_{capt}$  wird am Ende in SI-Einheiten angegeben.

Das, oben eingeführte, effektive Potential, in dem sich das Valenzelektron des Projektil-Moleküls befindet, ist durch

$$V(r, R) = -\frac{Q}{|r|} - \frac{1}{|R - r|} \quad (2.39)$$

gegeben (vergleiche Abb. 2.41 Oben). Das Maximum  $V_{max}$  der Potential-Barriere zwischen den beiden Stoßpartnern wird, nach  $\partial V / \partial r (r_{max}) = 0$  für die Elektronenkoordinate  $r_{max} = R\sqrt{Q}/(1 + \sqrt{Q})$  erreicht und beträgt

$$V_{max}(R) = -\left(1 + \sqrt{Q}\right)^2 / R. \quad (2.40)$$

Die Bindungsenergie  $I_B < 0$  des Valenzelektrons im Projektil-Molekül ist für unendlich große Abstände der Stoßpartner durch das entsprechende Ionisationspotential gegeben. Bei Annäherung an das ruhende HCl vergrößert sie sich annähernd auf  $I'_B = I_B - Q/R$ . Für den kritischen internuklearen Abstand, bei dem Ladungsaustausch stattfinden kann, entspricht diese lokal veränderte Bindungsenergie genau der Potential-Barriere. Damit kann  $R_{capt}$  durch

$$V_{max}(R_{capt}) = -|I_B| - Q/R_{capt} \quad (2.41)$$

bestimmt werden. Man erhält in SI-Einheiten (atomare Einheiten ohne den Faktor  $e^2/(4\pi\epsilon_0)$ ):

$$R_{capt} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{(2\sqrt{Q} + 1)}{|I_B|}. \quad (2.42)$$

Die Ionisationsenergie des am schwächsten gebundenen  $e^-$  im  $H_2$ -Molekül beträgt nach [239, 240] ungefähr  $|I_B(H_2)| = 15.426 \text{ eV}$ . Damit ergibt sich, nach Gleichung (2.42), ein Einfang-Abstand für den Ladungsaustausch zwischen  $H_2$  und  $Ar^{13+}$  von

$$R_{capt}(H_2, Ar^{13+}) = 7.66 \text{ \AA}. \quad (2.43)$$

Das  $H_2$ -Molekül wurde für die Diskussion des Ladungsaustauschprozesses als System aus einem Elektron, welches eine Punktladung im Molekülzentrum umgibt, betrachtet. Da  $R_{capt}$ , für den Ladungsaustausch zwischen  $H_2$  und  $Ar^{13+}$ , um ein Vielfaches größer ist als die Größe des Wasserstoff-Moleküls (kovalente Bindungslänge in  $H_2$  beträgt ca.  $0.74 \text{ \AA}$ ), scheint diese Annahme im Nachhinein gerechtfertigt.

Sobald der Elektronentransfer vom neutralen Wasserstoff-Molekül auf das HCl stattgefunden hat, stoßen sich die neu entstandenen Tochter-Teilchen  $Ar^{12+}$  und  $H_2^+$ , aufgrund der jetzt wirkenden Coulomb-Kraft, ab. Aus Energieerhaltung

$Qe^2/(4\pi\epsilon_0 R_{capt}) = p_{\perp, \text{Ar}^{12+}}^2/\mu$  und Impulserhaltung  $|p_{\perp, \text{Ar}^{12+}}| = |p_{\perp, \text{H}_2}|$  für die, zur Projektilbewegung senkrechten, Impulskomponenten folgt, als untere Abschätzung für die kinetische Energie der Tochter-Teilchen, folgende Beziehung:

$$E_{kin}(\text{H}_2/\text{Ar}^{12+}) \geq \frac{Qe^2}{4\pi\epsilon_0 R_{capt}} \frac{\mu}{M_{\text{H}_2/\text{Ar}^{12+}}}. \quad (2.44)$$

Die näherungsweise Gültigkeit der Ungleichung (2.44) folgt zum einen, aus dem Massenverhältnis der beiden Stoßpartner und zum anderen aus der spiralförmigen Trajektorie des  $\text{H}_2$ -Moleküls bei dem Elektroneneinfang durch das HCI nach der Einfang-Theorie von Langevin. In Abbildung 2.42 des nächsten Unterabschnitts ist schematisch die Trajektorie des leichten, neutralen Stoßpartners  $B$  skizziert, zusammen mit einem beispielhaften Punkt, ab dem Ladungsaustausch stattfinden könnte. Wird das  $e^-$  an dieser Stelle transferiert, so ist die Projektilgeschwindigkeit tangential zur Bewegungsbahn, d.h. der Impuls transversal dazu ist näherungsweise Null. Die nach dem Transfer wirkende Coulomb-Kraft ist eine Zentralkraft, so dass Ungleichung (2.44) als untere Abschätzung gilt.

Einsetzen der entsprechenden Größen liefert die gesuchte Abschätzung für die kinetische Energie des erzeugten  $\text{Ar}^{12+}$ -Ions von  $E_{kin}(\text{Ar}^{12+}) \geq 1.1 \text{ eV}$ . Dies entspricht einer Geschwindigkeit von  $v(\text{Ar}^{12+}) \geq 0.57 \text{ mm}/(250 \text{ ns})$ , wobei hier die Geschwindigkeit in Bezug auf die RF-Periode der Paulfalle angegeben wird. Diese kinetische Energie reicht aus, um den  $\text{Be}^+$ -Coulomb-Kristall, bei typischen Fallenfrequenzen von  $f_z = 100 \text{ kHz}$  und  $f_r = 200 \text{ kHz}$  eines einzelnen  $\text{Be}^+$ -Ions, zu verlassen. Vergleiche dazu typische Abbremslängen in der Größenordnung mehrerer 100 mm für eine experimentell typische  $\text{Be}^+$ -Teilchendichte und eine kinetische Energie des  $\text{Ar}^{12+}$ -Ions von 1 eV (siehe Abbildung 2.2 aus Kapitel 2.1.2). Die korrespondierende Geschwindigkeit kann das  $\text{Ar}^{12+}$ -Ion, innerhalb der halben RF-Periodendauer, in einen hohen, instabilen Orbit in der Paulfalle bringen. Dies stellt für ein nicht direkt lasergekühltes HCI mit hoher Wahrscheinlichkeit einen Heiz- und damit Verlustmechanismus aus der Falle dar, da, im Gegensatz zum Implantationsprozess, das Auftreten einer hohen transversalen Geschwindigkeitskomponente, durch den Ladungsaustausch, sehr wahrscheinlich ist. Bei dem sympathetischen Stoppen injizierter HCIs erfolgt die Bewegung hauptsächlich longitudinal.

Experimentell konnten nur Verlust-Ereignisse einzelner, ko-kristallisierter HCIs beobachtet werden und kein Ladungsaustausch. Dieser würde sich, bei konstanten Laser- und Fallenparametern, durch eine Verringerung der Ausdehnung, der dunklen Region um das HCI in den Fluoreszenzbildern, bemerkbar machen.

### 2.8.2 Langevin-Ratenkoeffizient

Um eine Vakuumdruckabschätzung im Falleninneren mittels Kenntnis der HCI-Verlustrate zu ermöglichen, wird die Rate, mit der Ladungsaustausch zwischen  $\text{H}_2$ -Molekülen und kristallisierten  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen stattfindet, mit Hilfe der klassischen Langevin Stoßtheorie [241–243] in erster Näherung berechnet. Hierfür wird das HCI als, zu Beginn des Stoßes, ruhend angenommen (dies gilt in erster Näherung für entlang

der Fallachse gespeicherte Ionen), während sich die  $\text{H}_2$ -Moleküle mit thermischen Geschwindigkeiten bewegen.

Stöße zwischen Ionen mit Ladungszustand  $Q$  und neutralen, polarisierbaren Atomen können in einem weiten Bereich niedrigerer Kollisionsenergien durch das Langevin-Modell, mit einer  $\sigma(E_{Kol}) \propto \sqrt{E_{Kol}}$  Abhängigkeit des Wirkungsquerschnittes für Ladungsaustausch- und Impulsübertragungs-Prozesse, beschrieben werden. Die Grenzen der Gültigkeit des Modells, bzgl. der Kollisionsenergien im Schwerpunktsystem der beiden Stoßpartner, werden später quantitativ betrachtet. Auch wenn die Einfang-Theorie nach Langevin erstmals für Stöße zwischen einfach geladenen Ionen und strukturlosen, neutralen Atomen durchdacht wurde, so kann sie direkt auf hochgeladene Ionen erweitert werden und behält ihre Gültigkeit auch für unpolare Moleküle (wie  $\text{H}_2$ ) [243].

Das elektrische Feld  $\vec{E}(R) = Qe/(4\pi\epsilon_0 R^2)\hat{R}$  des hochgeladenen Ions induziert ein Dipolmoment  $\vec{p}(R) = \alpha \vec{E}(R)$  im neutralen Teilchen, mit der statischen Polarisierbarkeit  $\alpha$ . Dabei bezeichnet  $R$  den Kernabstand zwischen den beiden Stoßpartnern und  $\hat{R}$  den entsprechenden Einheitsvektor. Aufgrund der Inhomogenität des ionischen E-Feldes spürt der induzierte Dipol des neutralen Teilchens eine anziehende ( $\alpha > 0$ ) oder abstoßende ( $\alpha < 0$ ) Kraft in Richtung HCl. Das langreichweitige  $R^{-4}$ -Wechselwirkungspotential  $V(R)$  zwischen einem HCl und einem polarisierbaren, neutralen Teilchen entspricht damit der Energie des induzierten Dipols des neutralen Teilchens im elektrischen Feld des Ions:

$$V(R) = -\frac{1}{2} \vec{p}(R) \cdot \vec{E}(R) = -\frac{C_4}{R^4}, \quad (2.45)$$

mit dem Koeffizienten

$$C_4 = \frac{\alpha}{2} Q^2 \frac{e^2}{(4\pi\epsilon_0)^2}. \quad (2.46)$$

Ist die Polarisierbarkeit  $\alpha$  des neutralen Teilchens positiv, wie es für  $\text{H}_2$  und die meisten Atome der Fall ist, so ergibt sich eine attraktive Wechselwirkung, wovon im Folgenden ausgegangen wird. Nach Gleichung (2.45) handelt es sich bei der Wechselwirkung zwischen HCl und neutralem Teilchen um die Bewegung zweier Körper (Ortskoordinaten  $\vec{r}_i$ , Massen  $M_i$ ) in einem Zentralpotential. Damit gelten die, aus Textbüchern der theoretischen Mechanik [244], bekannten Symmetrien des Zweikörperproblems, im Potential der Form  $V(|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|)$ . Die Translationsinvarianz impliziert die Erhaltung des Schwerpunktimpulses und ermöglicht die Reduktion zu einem äquivalenten Einteilchenproblem mit Lagrangefunktion

$$\mathcal{L}(\vec{R}, \dot{\vec{R}}) = \frac{\mu}{2} \dot{\vec{R}}^2 - V(R). \quad (2.47)$$

Diese beschreibt ein fiktives Teilchen der reduzierten Masse  $\mu = M_1 M_2 / (M_1 + M_2)$ , das sich im Zentralpotential  $V(R)$  bewegt. Da für das, hier relevante, Beispiel von  $\text{H}_2$  und  $\text{Ar}^{13+}$   $M_{\text{H}_2} \ll M_{\text{Ar}^{13+}}$  gilt, entspricht die Bewegung des fiktiven Teilchens näherungsweise der Bewegung des  $\text{H}_2$ -Moleküls.

Unter Einführung von Zylinderkoordinaten  $\vec{R} = (R, \varphi, z)$ , als verallgemeinerte Koordinaten, kann man Gleichung (2.47) umschreiben zu

$$\mathcal{L} = \frac{\mu}{2} \left( \dot{R}^2 + R^2 \dot{\varphi}^2 + \dot{z}^2 \right) - V(R) \quad (2.48)$$

und erhält direkt, über  $\frac{d}{dt} \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{q}_i} = \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial q_i}$ , die entsprechenden Lagrangschen Bewegungsgleichungen:

$$\mu \ddot{R} = \mu R \dot{\varphi}^2 - \frac{\partial V}{\partial R} \quad (2.49)$$

$$\frac{d}{dt} (\mu R^2 \dot{\varphi}) = 0 \quad (2.50)$$

$$\mu \ddot{z} = 0. \quad (2.51)$$

Da das Zentralpotential  $V(R)$  weder von  $z$  noch von  $\varphi$  abhängt, folgt aus der Rotationsinvarianz des Problems direkt die Erhaltung des Drehimpulses der Relativbewegung (bzw.  $H_2$ -Bewegung). Die Bewegung ist auf eine Ebene beschränkt und der Betrag  $l$  des Drehimpulses ist ebenfalls konstant. Dies erkennt man auch daran, dass Gleichung (2.51) formal einen Drehimpuls beschreibt. Somit gilt

$$l = \mu R^2 \dot{\varphi} = \text{const.}, \quad (2.52)$$

was zusammen mit der, durch die zeitliche Translationsinvarianz  $\partial \mathcal{L} / \partial t = 0$  bedingten, Erhaltung der Energie  $E = T + V$  des Einteilchenproblems, zu folgender Differentialgleichung erster Ordnung führt:

$$E = \frac{\mu}{2} \dot{R}^2 + \frac{l^2}{2\mu R^2} + V(R) = \text{const.} \quad (2.53)$$

Aus Gleichung (2.53) wird ersichtlich, dass sich das fiktive Teilchen mit reduzierter Masse  $\mu$  in einem effektiven Potential  $V_{eff}(R)$  der Form

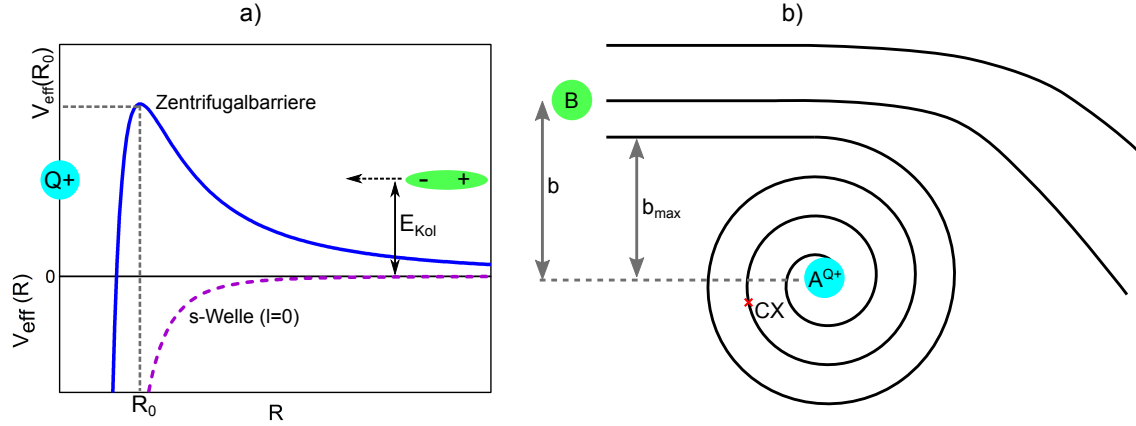
$$V_{eff}(R) = \frac{l^2}{2\mu R^2} - \frac{C_4}{R^4} \quad (2.54)$$

bewegt, welches sich, für  $l > 0$  aus dem (für  $\alpha > 0$ ) attraktiven HCI-Molekül-Wechselwirkungspotential und einem Zentrifugalpotential zusammensetzt. Das effektive Potential wird in Abbildung 2.42 a) in Abhängigkeit des Kernabstandes zwischen den beiden Stoßpartnern graphisch für verschiedene Drehimpulse, und damit Stoßparameter bei gleicher Kollisionsenergie, dargestellt.

Definiert man den Stoßparameter  $b$  der Kollision zwischen Ion und neutralem Teilchen als die kürzeste erreichbare Distanz zwischen den Stoßpartnern, in Abwesenheit des Wechselwirkungspotentials, dann kann der Drehimpuls  $l$  der Kollision auch in der Form

$$l = \mu v_{Kol} b, \quad (2.55)$$

mit der Kollisionsgeschwindigkeit im Schwerpunktsystem  $v_{Kol}$ , geschrieben werden. Wie man an Abbildung 2.42 a) erkennen kann, existiert für jede feste Kollisions-



**Abbildung 2.42:** a) Effektives Potential  $V_{\text{eff}}$  in Abhängigkeit des Kernabstandes  $R$  für zwei verschiedene Werte des Drehimpulses  $l$ . Ist  $l \neq 0$  ergibt sich eine Zentrifugalbarriere  $V_{\text{eff}}(R_0)$ . Nur wenn die Kollisionsenergie  $E_{\text{Kol}}$  im Schwerpunktsystem ausreicht um die Barriere zu überwinden, ergibt sich eine spiralförmige Trajektorie, wie in b) für Stoßparameter kleiner gleich  $b_{\text{max}}$  schematisch illustriert wird. b) Für Stoßparameter größer als  $b_{\text{max}}$  ergeben sich nur schwach ablenkende, streifende Kollisionen der beiden Stoßpartner (hier  $\text{H}_2$  und  $\text{Ar}^{13+}$ ). Stoßparameter kleiner als der kritische Wert  $b_{\text{max}}$  führen zu nach innen spiralförmig gerichteten Trajektorien, die eine kurzreichweitige Wechselwirkung, wie z.B. Ladungsaustausch, ermöglichen. Das rote Kreuz markiert beispielhaft einen Punkt, ab dem Ladungsaustausch (CX) stattfinden könnte. Adaptiert von [243, 245].

energie  $E_{\text{Kol}} = 1/2\mu v_{\text{Kol}}^2$  ein kritischer Stoßparameter  $b_{\text{max}}$ , der den Kollisionsprozess in zwei Fälle unterteilt: Für  $b < b_{\text{max}}$  ergibt sich eine nach innen gerichtete, spiralförmige Trajektorie, die hier das  $\text{H}_2$ -Molekül dem  $\text{HCl}$  so stark annähert, dass Ladungsaustausch stattfinden kann, während es für  $b > b_{\text{max}}$  nur zu einer streifenden Kollision kommt, da das neutrale Teilchen die Zentrifugalbarriere nicht überwinden kann (siehe Abb. 2.42 b).

Der Langevin-Wirkungsquerschnitt  $\sigma_L$  folgt direkt aus obiger Überlegung, dass für Stoßparameter kleiner als  $b_{\text{max}}$ , die Wahrscheinlichkeit Eins ist, dass es zu einer spiralförmigen Bahn mit  $R \rightarrow \infty$  kommt und Ladungsaustausch (oder eine andere Reaktion) stattfindet, während für Stoßparameter größer als  $b_{\text{max}}$  die Wahrscheinlichkeit für das Stattfinden einer solchen Reaktion (z.B. hier Ladungsaustausch) Null ist. Damit gilt [241–243]:

$$\sigma_L = \pi b_{\text{max}}^2, \quad (2.56)$$

wobei im Folgenden  $b_{\text{max}}$  in Abhängigkeit der Kollisionsenergie und der atomaren Eigenschaften der beiden Stoßpartner berechnet wird.

Die Bestimmung des Maximums der Funktion für das effektive Kollisionspotential  $V_{\text{eff}}$  aus Gleichung (2.54) führt zur Position  $R_0$  der Zentrifugalbarriere (vergleiche Abb. 2.42 a)

$$R_0 = \sqrt{\frac{4\mu C_4}{l^2}} \quad (2.57)$$

und damit zum Wert des effektiven Potentials bei diesem Kernabstand von

$$V_{eff}(R_0) = \frac{1}{16} \frac{l^4}{\mu^2 C_4} . \quad (2.58)$$

Die klassische Bedingung, dass eine bestimmte Kollisionsenergie ausreichen soll, um die Zentrifugalbarriere überwinden zu können, führt zu einem maximalen Drehimpuls

$$l_{max} = \sqrt{4\mu} (C_4 E_{Kol})^{\frac{1}{4}} , \quad (2.59)$$

der wiederum direkt mittels Gleichung (2.55) mit einem, für eine gegebene Kollisionsenergie, maximal möglichen Stoßparameter assoziiert ist, für den die spiralförmige Trajektorie aus Abb. 2.42 b) möglich ist. Mit dem so erhaltenen Ausdruck

$$b_{max} = \frac{l_{max}}{\mu v_{Kol}} = \frac{2}{\sqrt{2}} \left( \frac{C_4}{E_{Kol}} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (2.60)$$

für  $b_{max}$  erhält man, durch Einsetzen in Gleichung (2.56), den Wirkungsquerschnitt für Langevin-Wechselwirkung zwischen einem HCI und einem neutralen, polarisierbaren Teilchen:

$$\sigma_L(E_{Kol}) = 2\pi \sqrt{\frac{C_4}{E_{Kol}}} . \quad (2.61)$$

Für den Verlust an HCIs eines bestimmten Ladungszustandes aus der Paulfalle oder aus dem Spektroskopie-Ensemble aufgrund des Umladens, ist letztendlich die Rate, mit der Ladungsaustausch mit molekularem Wasserstoff stattfindet, entscheidend. Diese ist durch die Teilchendichte der  $H_2$ -Moleküle in der Fallenregion, sowie den, über alle möglichen Kollisionsgeschwindigkeiten gemittelten, Langevin-Ratenkoeffizienten  $k_L$  gegeben. Wie oben erläutert ist die Kollisionsgeschwindigkeit in dem betrachteten Fall durch die thermischen Geschwindigkeiten der  $H_2$ -Moleküle gegeben. Der Ratenkoeffizient lässt sich somit nach

$$k_L = \langle \sigma_L v_{Kol} \rangle = \int_0^\infty \sigma_L(v_{Kol}) v_{Kol} f(v_{Kol}) dv \quad (2.62)$$

bestimmen, wobei  $f(v)$  für die Maxwellsche Geschwindigkeitsverteilung steht. Da selbige entsprechend  $\int_0^\infty f(v) dv = 1$  normiert ist und weiterhin  $\sigma_L \propto v_{Kol}^{-1}$  ist, hängt der Langevin-Ratenkoeffizient nicht von der Kollisionsenergie (und damit auch nicht von der Temperaturverteilung der  $H_2$ -Moleküle) ab. Durch Berücksichtigung der Gleichungen (2.61) und (2.46) erhält man:

$$k_L = \frac{Q e}{2 \epsilon_0} \sqrt{\frac{\alpha}{\mu}} . \quad (2.63)$$

Der Langevin-Ratenkoeffizient hängt also nur vom Ladungszustand des Ions, der Polarisierbarkeit des neutralen Teilchens und der reduzierten Masse beider Stoßpartner ab.

Unter Verwendung des, in [246] angegebenen, Wertes für die Polarisierbarkeit

$\alpha(\text{H}_2) = 4\pi\epsilon_0 (0.787 \times 10^{-24} \text{ cm}^3)$  von molekularem Wasserstoff, lässt sich der Langevin-Ratenkoeffizient für den Ladungsaustausch zwischen  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen und  $\text{H}_2$ -Molekülen nach Gleichung (2.63) zu

$$k_L(\text{Ar}^{13+}, \text{H}_2) \approx 1.957 \times 10^{-8} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1} \quad (2.64)$$

berechnen.

Die in den Veröffentlichungen [234, 247], die Ladungsaustausch zwischen  $\text{HCl}$ s und  $\text{H}_2$  in kryogenen Penningfallen diskutieren, angegebenen Werte für Langevin-Ratenkoeffizienten stimmen näherungsweise mit dem in Ausdruck (2.64) angegebenen Wert überein. So berichtet [247] über einen, mit dem Ladungszustand  $Q$  skalierenden Wert von  $k_L(\text{Ar}^{Q+}, \text{H}_2) \approx Q \times 1.52 \times 10^{-9} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$  für  $3 \leq Q \leq 6$ .

Andere, mögliche Restgase wie  $\text{N}_2$  oder  $\text{O}_2$ , die ballistisch aus dem äußeren Raumtemperaturbereich der Fallenkammer durch die offenen Zugänge in die Hauptfallenregion strömen könnten, besitzen Polarisierbarkeiten ähnlicher Größenordnung wie  $\text{H}_2$ . Hier würden sich folglich Langevin-Ratenkoeffizienten vergleichbarer Größenordnung ergeben.

### 2.8.3 Grenzen der Gültigkeit des Langevin-Modells

Nach der Berechnung des Langevin-Ratenkoeffizienten im vorherigen Unterabschnitt, für Stöße zwischen  $\text{H}_2$  und  $\text{Ar}^{13+}$ , soll nun der Bereich an Kollisionsenergien  $E_{Kol}$  bestimmt werden, für den das Langevin-Modell und damit der korrespondierende Ratenkoeffizient Gültigkeit besitzt.

Die untere Grenze des Energiebereichs ist durch den Beginn des s-Wellen-Streuregimes festgelegt [245, 248]. Hierfür kann der Zentrifugalterm des effektiven Streupotentials in Gleichung (2.54), mittels der Drehimpuls-Quantenzahl  $\tilde{l}$ , auch in der Form

$$V_{eff}(R) = \frac{\tilde{l}(\tilde{l}+1)\hbar^2}{2\mu R^2} - \frac{C_4}{R^4}$$

beschrieben werden. Das Maximum der Zentrifugalbarriere für  $\tilde{l} = 1$  (p-Welle) liefert dann die untere Kollisionsenergie-Grenze  $E_s$ , so dass für  $E_{Kol} < E_s$  das semiklassische Langevin-Modell seine Gültigkeit verliert. Die charakteristische Grenzenergie, für den Stoß zwischen  $\text{H}_2$  und  $\text{Ar}^{13+}$ , ergibt sich folglich durch Einsetzen der entsprechenden Werte in die, mittels Gleichung (2.58) bestimmte, Formel

$$E_{Kol} > E_s = \frac{1}{4} \frac{\hbar^4}{\mu^2 C_4} = \frac{1}{\alpha \mu^2 Q^2} \left( \frac{\hbar^2 4\pi\epsilon_0}{\sqrt{2}e} \right)^2. \quad (2.65)$$

Man erhält  $E_s(\text{H}_2, \text{Ar}^{13+}) = 1.26 \text{ neV} = k_B \times 14.6 \text{ pK}$ . Für eine Kollisionsenergie von  $0.7 \text{ meV} \approx k_B \times 8 \text{ K}$  der  $\text{H}_2$ -Moleküle tragen z.B. bei  $b_{max}$  39 Partialwellen bei, weit entfernt vom s-Wellen-Streuregime.

Das Langevin-Modell verliert für zu hohe Kollisionsenergien genau dann seine Gültigkeit, wenn der maximale Stoßparameter so klein wird, dass Ladungsaustausch außerhalb der Zentrifugalbarriere eine Rolle spielt. Die obere Grenze der, mit dem



Langevin-Modell verträglichen, Kollisionsenergien ist also durch  $R_0(b_{max}) = R_{capt}$  gegeben. Eine obere Grenze für die Anfangsenergie ergibt sich somit durch Gleichsetzen der Gleichungen (2.42) und (2.57 für  $b_{max}$ ) zu:

$$E_{Kol} < \alpha I_B^4 \frac{Q^2}{(2\sqrt{Q} + 1)^4} \frac{(4\pi\epsilon_0)^2}{2e^6}. \quad (2.66)$$

Für den hier diskutierten Fall des Ladungsaustausches (genauer: Transfer eines  $e^-$  von dem  $H_2$ -Molekül auf ein  $Ar^{13+}$ -Ion) zwischen  $H_2$  und  $Ar^{13+}$ -Ionen ergibt sich, für die Anwendbarkeit des Langevin-Ratenkoeffizienten, die Bedingung  $E_{Kol} < 0.277 \text{ eV} = k_B \times 3219 \text{ K}$ .

Für thermische Kollisionsenergien der  $H_2$ -Moleküle, im experimentell möglichen Temperatur-Bereich zwischen 4 K (0.34 meV, minimal erreichbare Temperatur im Fallenbereich) und 300 K (25.8 meV, ballistischer Gasfluss vom Raumtemperatur-Bereich der Vakuumkammer in die Hauptfallenregion), ist nach obigen Überlegungen zum Gültigkeitsbereich des Langevin-Modells, dessen Anwendbarkeit zur Bestimmung der Ladungsaustauschrate zwischen neutralen Restgas-Teilchen und auf der Fallenachse lokalisierten HCIs stets gegeben.

#### 2.8.4 Vakuumdruckabschätzung

Da einzelne HCIs auch in größeren  $Be^+$ -Coulomb-Kristallen als einzelne Ionen identifiziert werden können, kann ihre Verlustrate durch Beobachtung der CCD-Fluoreszenzbilder (vergleiche Abb. 2.26) erfasst werden. Die Lebensdauer eines  $Ar^{13+}$ -Ions wurde experimentell zu  $\tau \approx 15 \text{ min}$  bestimmt. Unter der Annahme, dass der Ladungsaustausch mit  $H_2$ -Restgas der dominierende HCI-Verlustmechanismus ist und nach Kenntnis des Langevin-Ratenkoeffizienten aus Gleichung (2.64), kann die  $H_2$ -Teilchendichte in der Fallenregion nach

$$n = \frac{1}{\tau k_L} \quad (2.67)$$

berechnet werden. Einsetzen der entsprechenden Größen liefert einen Wert von  $n_{H_2} \approx 5.68 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$  für das vorliegende Experiment.

Der mit der Teilchendichte verknüpfte, im 8 K Fallenbereich herrschende, Vakuumdruck ist durch den Partialdruck von  $H_2$  gegeben, da alle relevanten Restgase außer Ne, He und  $H_2$  bei Temperaturen  $< 20 \text{ K}$  vollständig kondensiert sind. Der Vakuumdruck im Fallenbereich kann folglich, nach dem idealen Gasgesetz, für eine bestimmte Temperatur, durch

$$p_{H_2} = n_{H_2} k_B T \quad (2.68)$$

angegeben werden. Man erhält einen Vakuumdruck von  $p(H_2@8 \text{ K}) \approx 6 \times 10^{-14} \text{ mbar}$ , für die Annahme, dass die  $H_2$ -Teilchendichte allein durch die 8 K Umgebung der Fallenregion bedingt ist und einen Wert von  $p(H_2@300 \text{ K}) \approx 2 \times 10^{-12} \text{ mbar}$ , sollte die  $H_2$ -Teilchendichte allein durch, aus dem Raumtemperatur-Bereich, durch die 15 Zugänge, einströmenden Moleküle gegeben sein. Diese Ergebnisse stehen in Übereinstimmung mit den, auf  $Mg^+$ -Ionen basierenden, in CryPTEx

durchgeführten Messungen aus [50]. Der ballistische Fluss von  $\text{H}_2$ -Molekülen aus dem Raumtemperatur-Bereich in die Fallenregion könnte in Zukunft durch das Einsetzen von Fenstern bei allen optischen Zugängen minimiert werden. Um ausge dehntere Experimente mit kalten HCIs durchführen zu können, z.B. Hochpräzisions-Laserspektroskopie, ist es notwendig, die beobachtete HCI-Verlustrate um mindestens eine, besser zwei Größenordnungen zu verringern.

## 2.9 Temperaturbestimmung für Mischkristalle

Eine direkte Möglichkeit die Temperatur des ko-kristallisierten HCIs genau zu bestimmen bestünde in der Analyse des, mittels Laser-Spektroskopie eines schmalbandigen Übergangs aufgenommenen, Linienprofils. Hierfür müsste gewährleistet sein, dass die natürliche Linienbreite des Übergangs genau genug bekannt und vorzugsweise deutlich kleiner als die thermisch zu erwartende Linienbreite ist, sowie das Vorhandensein eines ebenfalls schmalbandigen Lasers geringer Intensität, so dass sowohl die Linienbreite des Lasers selbst als auch die Sättigungsverbreiterung des Übergangs vernachlässigbar klein gegenüber der thermischen Linienbreite wären. Da zusätzlich die sympathetische Kühlung durch die  $\text{Be}^+$ -Ionen unabhängig von der Frequenz des Spektroskopie-Lasers ist, wäre bei geringer Leistung des Lasers ein symmetrisches Abfahren des Linienprofils möglich. Solange diese Methode der direkten Temperaturbestimmung nicht realisiert wurde, kann die Temperatur des HCIs nur indirekt bestimmt werden. Dies kann für dreidimensionale, größere Coulomb-Kristalle, durch die Betrachtung der Fluoreszenzbilder und deren Interpretation mit Hilfe des Plasma-Kopplungsparameters oder mit Hilfe von Molekulardynamik-Simulationen, durchgeführt werden. Für gemischte Ionenketten kann die HCI-Temperatur mittels Positions-Thermometrie durch die Bestimmung der Breite der räumlichen Fluoreszenzlicht-Verteilung benachbarter  $\text{Be}^+$ -Ionen abgeschätzt werden.

Es sei hier nochmals darauf hingewiesen, dass alle in dieser Arbeit gezeigten Aufnahmen dreidimensionaler Coulomb-Kristalle mit Paulfallenelektronik-Variante B (vernachlässigbare axiale Mikrobewegung) gemacht wurden, während alle Aufnahmen von Ionenketten mit Elektronik-Variante A (axiale Mikrobewegung mit Modulationsindices [132] für ein einzelnes  $\text{Be}^+$ -Ion in der Größenordnung von 30) durchgeführt wurden.

### 2.9.1 T-Bestimmung über Plasma-Kopplungs-Parameter

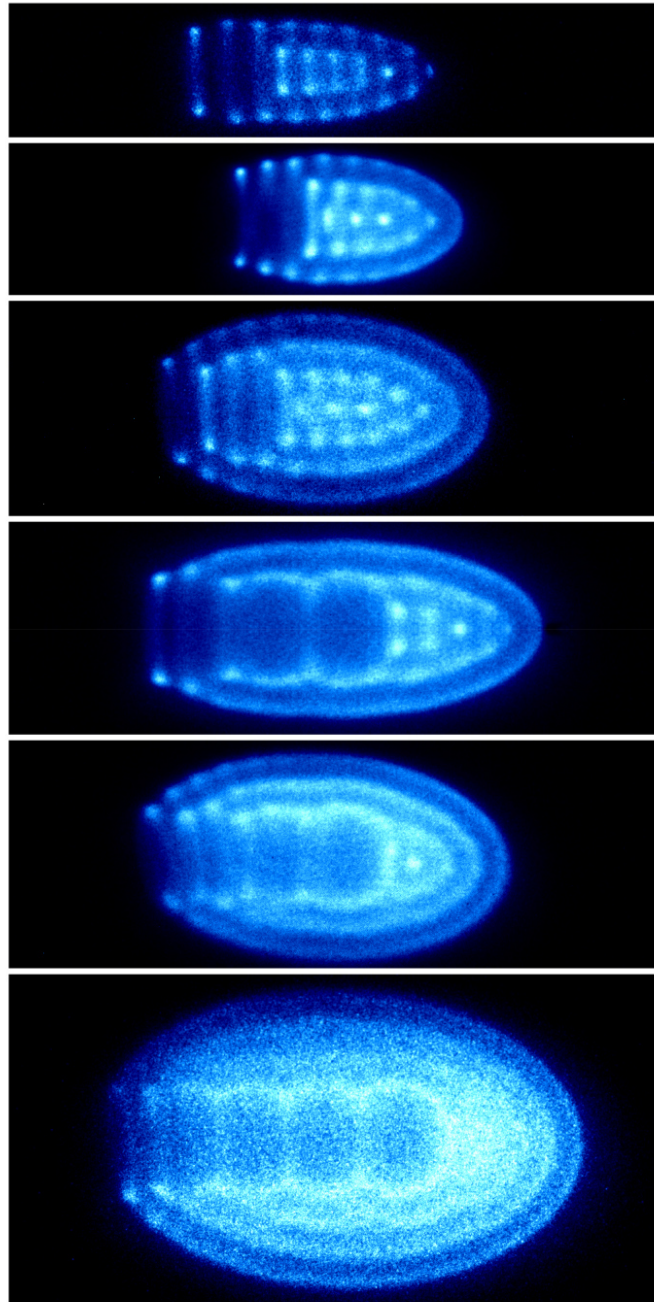
Der thermodynamische Zustand eines einkomponentigen Ionen-Plasmas kann mit Hilfe des so genannten Plasma-Kopplungs-Parameters  $\Gamma_{KP}$  [218, 249, 250] charakterisiert werden. Er wird als Verhältnis zwischen der Coulomb-Energie benachbarter Ionen und dem Energieäquivalent  $k_B T$  der Plasma-Temperatur definiert:

$$\Gamma_{KP} = \frac{Q^2 e^2}{4\pi\epsilon_0 a_{WS} k_B T}. \quad (2.69)$$

Der in Gleichung (2.69) vorkommende, auch aus der Kristalltheorie der Festkörperphysik bekannte, Wigner-Seitz-Radius  $a_{WS}$  lässt sich für das geladene Ionenplasma einer Ionenfalle mit Hilfe der Teilchendichte  $n_0$  des Plasmas über die Beziehung

$$n_0 = \frac{1}{4/3 \pi a_{WS}^3} \quad (2.70)$$

bestimmen. Die Beziehung (2.70) drückt die Definition des Wigner-Seitz-Radius als Radius der Kugel, deren Volumen gerade dem mittleren Volumen pro Ion im



**Abbildung 2.43:** CCD-Bilder dreidimensionaler, gemischter Coulomb-Kristalle, aufgenommen für unterschiedliche Laser- und Fallenparameter. Bei den obersten drei Aufnahmen wurden je 2  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, bei den nächsten beiden je 4 und bei der letzten 5  $\text{Ar}^{13+}$  ko-kristallisiert. Die implantierten HCIs sind stets vollständig kristallisiert, auch wenn sich der thermodynamische Zustand des, sie umgebenden,  $\text{Be}^+$ -Ionen-Ensembles von vollständig kristallisiert bis hin zu dem Fall, dass nur gerade eine Schalenstruktur ausgebildet ist, verändert. Es wird je ein Ausschnitt des CCD-Kamera-Bildes mit einer Länge von  $948\,\mu\text{m}$  gezeigt. Das vierte Bild von oben konnte aus technischen Gründen nur zu drei viertel in der Kristallhöhe aufgenommen werden und wurde daher nachträglich durch den gespiegelten unteren Teil ergänzt.

Plasma entspricht, formal aus. Sie gilt nur, sobald das Ionenplasma wenigstens den thermodynamischen Zustand einer Flüssigkeit erreicht hat, da hier, im Gegensatz zur Ionenwolke, mit einer konstanten Ladungs- und damit Teilchendichte gerechnet werden kann (Zero-T-Charged-Liquid-Modell: [175, 251]). Die Ionendichte selbst hängt wiederum nur von der Masse  $M$  der Teilchen und der Stärke des radialen Paulfallen-Einschlusses nach

$$n_0 = \frac{V_{RF}^2 \epsilon_0}{M r_0^4 \Omega_{RF}^2} \quad (2.71)$$

ab [175, 251, 252]. Bzgl. der Ioneneigenschaften ist der Wigner-Seitz-Radius folglich nur über  $a_{WS} \propto \sqrt[3]{M}$  von der Masse und nicht der Ladung der Ionen abhängig. Für die Plasmatemperatur  $T$  gelten somit die folgenden Proportionalitäten:

$$T \propto \frac{1}{\Gamma_{KP}} \frac{Q^2}{\sqrt[3]{M}}. \quad (2.72)$$

Gleichung (2.72) besagt auch, dass ein Plasma aus hochgeladenen Ionen bereits bei Temperaturen kristallisieren kann, bei denen ein Plasma aus einfach geladenen Ionen z.B. noch flüssig wäre.

Die Zuordnung verschiedener thermodynamischer Zustände des Ionenplasmas, wie flüssiger Zustand, Beginn der Ausformung einer ellipsoidalen Schalenstruktur, vollständige Schalenstruktur und vollständige Kristallisation, zu einem entsprechenden Wert des Plasma-Kopplungs-Parameters erfolgte mit Hilfe von Molekulardynamik-Simulationen [250, 252]. Für die relativ kleinen dreidimensionalen Coulomb-Kristalle dieser Arbeit (in der Regel weniger als  $10^4$  Kühltionen, typischerweise 100 – 1000), wurden nur Werte von  $\Gamma_{KP}$  betrachtet, die für die Simulation endlicher, kleinerer Ionen-Ensembles erhalten wurden. Wie in [250, 252] beschrieben, erfolgt für  $\Gamma_{KP} \approx 2$  der Übergang in den flüssigen Zustand, für immer niedrigere Temperaturen beginnt dann zunächst die Ausbildung konzentrischer, ellipsoidaler Schalen, bis für einen Wert von  $\Gamma_{KP} \approx 140$  das Ionen-Ensemble einen Kristall in der Richtung senkrecht zu der Oberflächennormalen der Schalen darstellt, während das Ionenplasma innerhalb einer Schale noch flüssig ist und einen hohen Grad an Diffusion aufweist. Anschließend folgt bis zur vollständigen Kristallisation ab  $\Gamma_{KP} \geq 300$  ein kontinuierlicher Übergang, bei dem die Ionen mehr und mehr innerhalb der Schalen auskristallisieren. Zusammengefasst gelten somit folgende Grenzwerte für endliche, kleinere Ionen-Ensembles [250, 252]:

$\Gamma_{KP} \approx 2$	Flüssig	
$\Gamma_{KP} \approx 20$	Beginn Schalenstruktur	
$\Gamma_{KP} \approx 140$	Vollständige Schalenstruktur	
$\Gamma_{KP} \geq 300$	Vollständig kristallisiert.	(2.73)

Für eine experimentelle Abschätzung der Ionentemperatur werden die CCD-Aufnahmen bzgl. des Kristallisationsgrades begutachtet und es wird ein Wert für den Plasma-Kopplungs-Parameter nach den Beziehungen (2.73) ermittelt. Anschließend

kann die Temperatur nach Gleichung (2.69) abgeschätzt werden, da der Wigner-Seitz-Radius aus dem angelegten radialen Fallenpotential ebenfalls direkt berechnet werden kann.

In Abbildung 2.43 sind mehrere CCD-Bilder, aufgenommen für unterschiedliche Laser- und Fallenparameter, zu sehen. Die Wigner-Seitz Radien liegen für die gemachten Aufnahmen zwischen  $22\text{ }\mu\text{m}$  (z.B. unterstes Bild) und  $23\text{ }\mu\text{m}$  (z.B. oberstes Bild). Die implantierten HCl's sind stets vollständig kristallisiert, auch wenn sich der thermodynamische Zustand des, sie umgebenden,  $\text{Be}^+$ -Ionen-Ensembles von vollständig kristallisiert (ganz oben) bis hin zu einem verstärkten Beginn der Ausformung einer ellipsoidalen Schalenstruktur (ganz unten) verändert. Selbst wenn man von keinem thermischen Gleichgewicht zwischen den beiden Ionensorten ausgehen sollte, würde somit stets  $T(\text{Ar}^{13+}) \leq 260\text{ mK}$  als obere Abschätzung für die Temperatur der implantierten HCl's gelten. Aufgrund der geringeren Ladung ist der thermodynamische Zustand der  $\text{Be}^+$ -Ionen ein empfindlicheres Maß für die Iontemperatur. Eine Betrachtung der CCD-Aufnahmen aus Abbildung 2.43 liefert eine obere Abschätzung von  $T(\text{Be}^+) \leq 2.5\text{ mK}$  für das oberste Bild und eine Abschätzung von  $6\text{ mK} \leq T(\text{Be}^+) \leq 38\text{ mK}$  für das unterste Bild.

Sind HCl- und Kühltionen-Ensemble im thermischen Gleichgewicht, so gelten für die HCl's ebenfalls, die oben genannten, Kühltionen-Temperaturen. Wie man anhand der CCD-Aufnahmen 2 – 4 in Abbildung 2.43 vermuten kann, kann es jedoch auch zu Temperaturgradienten innerhalb eines Coulomb-Kristalls kommen. So sind hier die inneren Schalen des Kühltionen-Ensembles vollständig kristallisiert, während die äußeren vermehrt flüssig aussehen. Dies ist insofern nicht verwunderlich, als die Kopplung zwischen den Ionen in und derselben Schale stärker ist als diejenige zwischen den Schalen. Des Weiteren sind Heizraten, aufgrund von Excess-Mikrobewegung, die mit zunehmendem Abstand zur Fallenachse zunimmt, für die weiter außen gelegenen Schalen höher als für die innen angeordneten Ionen. Es kann also auch möglich sein, dass gerade entlang der Fallenachse angeordnete HCl's größerer Masse kälter sind als die sie umgebenden Kühltionen.

### 2.9.2 T-Bestimmung durch Molekulardynamik-Simulationen

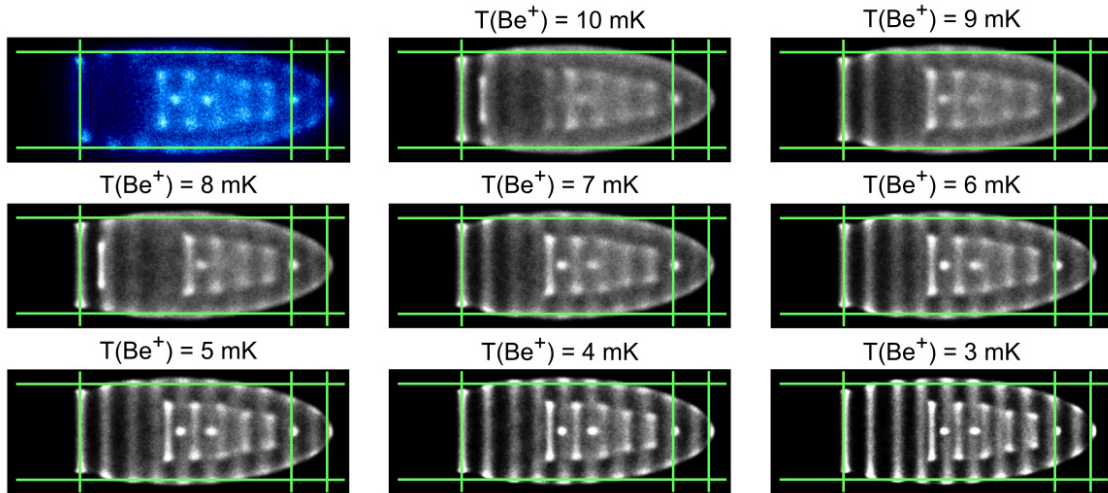
Eine weitere gängige Methode zur Thermometrie größerer dreidimensionaler Coulomb-Kristalle besteht in dem Vergleich experimentell aufgenommener CCD-Bilder des Kühltionen-Fluoreszenzlichtes mit den Ergebnissen von Molekulardynamik-Simulationen [66, 113, 254].

In diesem Zusammenhang konnten zwei experimentelle CCD-Aufnahmen eines kleineren gemischten Coulomb-Kristalls, durch Anpassen der verwendeten Fallen- und Laserparameter, im Rahmen der experimentell bestimmten Werte, mittels molekulardynamischer Simulationen reproduziert werden [253]. Die vorläufigen Simulationen wurden von unserem Kollaborationspartner J. Pedregosa-Gutierrez, durchgeführt (siehe auch [255] zur Anwendung auf ein anderes Ionen-System). Diese Simulationen können, im Gegensatz zu den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten molekulardynamischen Simulationen (Pseudopotential ohne Mikrobewegung), je nach Anforderung zwischen reinem Pseudopotential mit thermischem Bad für die

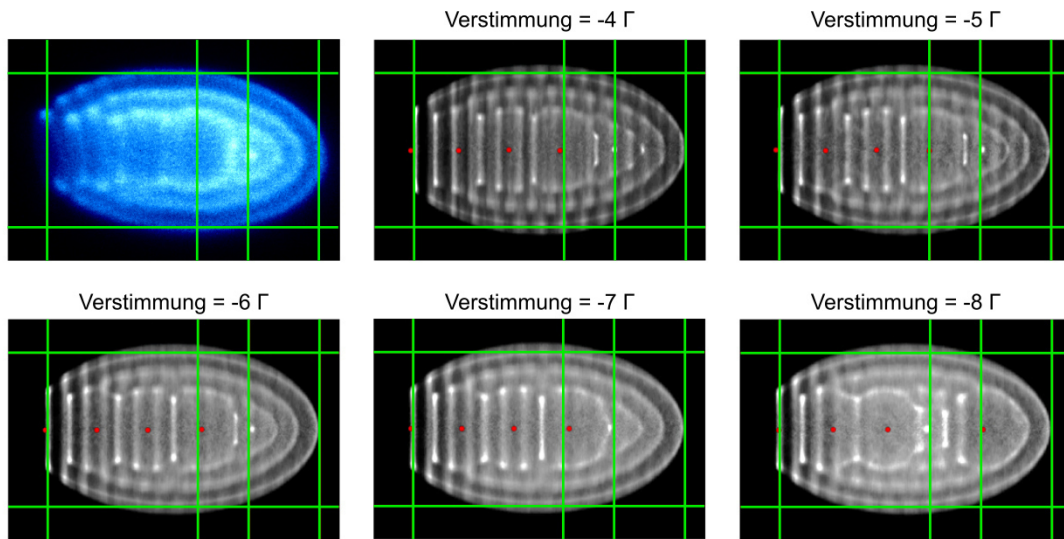
Ionentemperatur und kompletter Modellierung des Laserkühlvorgangs eines Zwei-Niveau-Systems mit RF-Mikrobewegung wechseln. Die im Rahmen dieser Arbeit erstellten MD-Simulationen (siehe z.B. Abb. 2.30) sind somit zur Bestimmung der individuellen Ionenpositionen eines Kristalls unter Laserkühlbedingungen geeignet, aber durch fehlende Inkludierung der Mikrobewegung (kein RF-Heizen) nicht zur genauen Temperaturbestimmung verwendbar.

In einem ersten Simulations-Durchlauf wurden die Positionen zweier  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen, bestimmt aus dem experimentellen CCD-Bild, erst fixiert, während die Geschwindigkeiten der 114  $\text{Be}^+$ -Ionen iterativ über  $v_x = v_x \sqrt{T_{\text{bath}} / \langle T_x \rangle}$  festgelegt wurden. Dies entspricht dem Bild, dass sich die Kühllionen langsam dem thermischen Gleichgewicht mit einem Reservoir der Temperatur  $T_{\text{bath}}$  annähern. In einem zweiten Schritt wurde die Fixierung der HCI-Positionen aufgehoben. Der Vergleich der simulierten CCD-Bilder mit der experimentellen Aufnahme, wird in Abbildung 2.44 für verschiedene gesetzte Ionentemperaturen zusammengefasst.

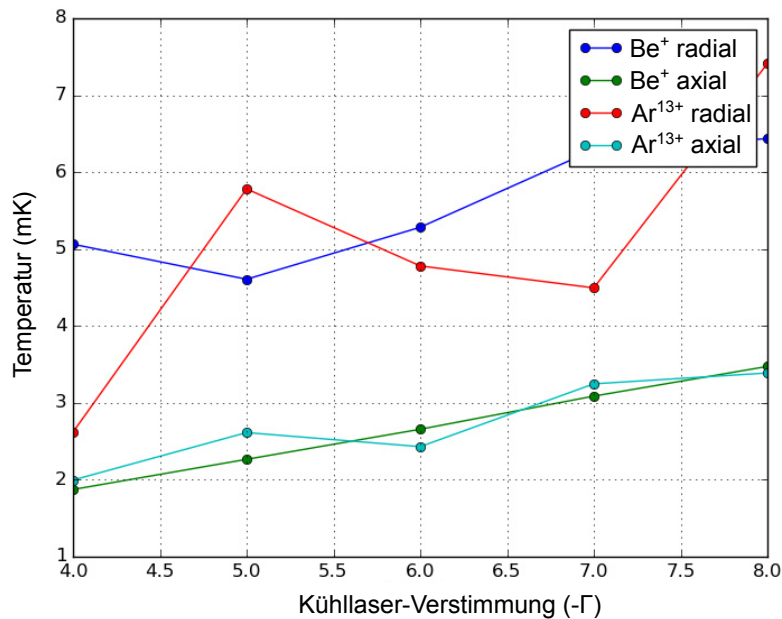
Über einen optischen Vergleich der simulierten Bilder mit den experimentellen, lässt sich dann eine Abschätzung bezüglich der zu wählenden Temperatur des Kristalls machen. Für den optischen Vergleich wurden in ein experimentelles CCD-Bild (links oben in Abbildung 2.44) grüne Linien an markanten Ionenpositionen eingefügt, um in den Simulationen die korrekte Reproduktion der tatsächlichen Ionenpositionen besser überprüfen zu können. Ein weiteres optisches Maß sind die Verschwommen-



**Abbildung 2.44:** Vergleich einer experimentellen CCD-Aufnahme eines gemischten Coulomb-Kristalls (blau, links oben) mit vorläufigen, von J. Pedregosa-Gutierrez durchgeführten Molekulardynamik-Simulationen für verschiedene, anfangs gesetzte, Temperaturen der  $\text{Be}^+$ -Ionen [253]. Temperatur ist hier als mittlere kinetische Energie des Kühllionen-Ensembles zu verstehen (gemittelt über alle Ionen eines Ensembles und über viele Perioden der Säkularbewegung). Die Simulation wurde für 2  $\text{Ar}^{13+}$  und 114  $\text{Be}^+$ -Ionen durchgeführt, was im Rahmen der Fehler zu der experimentellen CCD-Aufnahme passt. MD-Simulation basiert hier auf Vorgabe einer Ionentemperatur durch ein thermisches Bad im Pseudopotential (keine Mikrobewegung). Länge der CCD-Bilder: 477  $\mu\text{m}$ .



**Abbildung 2.45:** Vergleich einer experimentellen CCD-Aufnahme eines gemischten Coulomb-Kristalls (blau, links oben) mit vorläufigen, von J. Pedregosa-Gutierrez durchgeführten, Molekular-dynamik-Simulationen für verschiedene Verstimmungen des Kühllasers [253]. Die entsprechenden, simulierten Temperaturen für Kühllionen und HCIs sind in Abbildung 2.46 in Abhängigkeit der Verstimmung zu sehen. Die Simulation wurde für 4  $\text{Ar}^{13+}$  und 500  $\text{Be}^+$ -Ionen durchgeführt, was im Rahmen der experimentellen Fehler bei der Bestimmung der Kühllionen-Anzahl zu der experimentellen CCD-Aufnahme passt. MD-Simulation basiert komplett auf Modellierung des Laserkühlvorgangs eines Zwei-Niveau-Systems (hier mit RF-Mikrobewegung). Länge der CCD-Bilder: 644  $\mu\text{m}$ .



**Abbildung 2.46:** von J. Pedregosa-Gutierrez simulierte Temperaturen für alle Raumrichtungen, im Sinne der mittleren kinetischen Energie der jeweiligen Ionensorte in axialer bzw. radialer Richtung [253]. Alle, zu den hier gezeigten Temperaturen gehörende CCD-Bilder, sind in Abbildung 2.45 zu sehen.



heit und Helligkeit der einzelnen Ionen. Es ergeben sich gute Übereinstimmungen mit den experimentellen Bildern bei Temperaturen von  $T(Be^+) \approx 4 - 6$  mK. Dies passt wiederum gut zu den, mit Hilfe des Plasma-Kopplungs-Parameters, abgeschätzten Temperaturen des vorangegangenen Kapitels.

Für die in Abbildung 2.44 gezeigten simulierten CCD-Bilder waren folgende Fallen- und Laserparameter eingestellt: Fallenparameter:  $V_{RF} = 51$  V (peak-to-peak),  $\Omega_{RF} = 2\pi \times 4.23$  MHz,  $r_0 = 3.5$  mm,  $\kappa = 0.249$ ,  $U_{DC} = 480$  mV Laserparameter:  $\lambda = 313.13$  nm,  $\Gamma = 2\pi \times 19.4$  MHz, Sättigungsparameter  $s = I/I_{sat} \approx 15$ , Kühllaser-Verstimmung  $\approx -8 \times \Gamma$ .

Wird die Position des HCIs von Anfang an frei gelassen und die Simulation unter Berücksichtigung der RF-Mikrobewegung komplett durch Modellierung des Laserkühlvorgangs (wie experimentell nur ein Kühllaserstrahl entlang der Achse) eines Zwei-Niveau-Systems durchgeführt, so ergeben sich, bei Variation der Verstimmung  $\Delta$  des Kühllasers, die CCD-Histogramme in Abbildung 2.45 für einen anderen dreidimensionalen, gemischten Coulomb-Kristall, bestehend aus 500  $Be^+$ - und 4  $Ar^{13+}$ -Ionen (rote Punkte markieren die endgültigen Positionen der HCIs). Aus der, über alle Ionen einer Sorte und viele Perioden der Säkularbewegung, gemittelten kinetischen Energie lässt sich dann sowohl die Temperatur der Kühlionen als auch die der sympathetisch gekühlten HCIs bestimmen (Abbildung 2.46). Optisch passt die CCD-Bild-Simulation mit einer Verstimmung von  $-6\Gamma$  am besten zu den experimentellen Daten und liefert somit eine axiale (radiale) Temperatur von 2.8 mK (5.3 mK) für die  $Be^+$ -Ionen, ebenfalls in Übereinstimmung mit der Plasma-Kopplungs-Parameter-Methode, und 2.5 mK (4.8 mK) für die HCIs. Zusätzlich erkennt man, dass die Ionentemperaturen keine starke Abhängigkeit von der Laser-Verstimmung im untersuchten Bereich zeigen.

Der in Abbildung 2.45 simulierte Effekt, dass eines der HCIs beim Übergang der Kühllaser-Verstimmung von  $\Delta = -7\Gamma$  nach  $\Delta = -8\Gamma$ , verbunden mit einer verminderten axialen Lichtdruckkraft auf die Kühlionen, nach rechts rutscht, konnte auch experimentell beobachtet werden. Die Punktantwort des experimentellen Aufnahmesystems wurde hier nicht inkludiert. Die Temperaturen im experimentellen Kristall könnten geringfügig höher liegen, da dieser, wie in Abbildung 2.45 zu erkennen ist, im Gegensatz zu dem Mischkristall aus Abb. 2.44, nicht perfekt im RF-Feld zentriert war.

Für die in Abbildung 2.45 gezeigten simulierten CCD-Bilder waren folgende Fallen- und Laserparameter eingestellt: Fallenparameter:  $V_{RF} = 53$  V (peak-to-peak),  $\Omega_{RF} = 2\pi \times 4.23$  MHz,  $r_0 = 3.5$  mm,  $\kappa = 0.249$ ,  $U_{DC} = 810$  mV Laserparameter:  $\lambda = 313.13$  nm,  $\Gamma = 2\pi \times 19.4$  MHz, Sättigungsparameter  $s = I/I_{sat} \approx 12$ , Kühllaser-Verstimmung wurde variiert.

### 2.9.3 T-Bestimmung über Positions-Thermometrie

Im Folgenden wird betrachtet, wie die axiale Temperatur der  $\text{Be}^+$ -Ionen einer gemischten Ionenkette mittels Positions-Thermometrie [82, 192, 232, 256, 257], anhand der aufgenommenen CCD-Bilder, bestimmt werden kann.

Für ausreichend geringe kinetische Energien (laser-gekühlt) stellt ein einzelnes, im harmonischen Pseudopotential einer Paulfalle gespeichertes, Ion ein gutes Beispiel für den, in vielen Lehrbüchern der Physik behandelten, quantenmechanischen harmonischen Oszillator dar. Da wir beispielhaft nur an der axialen Ionentemperatur interessiert sind, erfolgt die Beschränkung auf eine Dimension. Alle harmonischen Schwingungen können auf die gleiche Art quantisiert werden, mit Phononen der Energie  $\hbar\omega$  als fundamentales Quantum. Die stationären Eigenzustände  $\psi_n(z)$  im Ortsraum eines Ions der Masse  $M$ , mit potentieller Energie  $M\omega_z^2 z^2/2$ , gehören damit zu den entsprechenden Energie-Eigenwerten  $E_n = \hbar\omega_z(n + 1/2)$ .

Geht man davon aus, dass es sich bei der thermischen Bewegung des Ions um einen ergodischen Prozess handelt, so kann das Ensemble-Mittel gleich dem zeitlichen Mittel für ein einzelnes Teilchen gesetzt werden. Unter dieser Annahme lässt sich die Temperatur  $T$  eines einzelnen Ions nach der Bose-Einstein-Relation [167, 258] durch die mittlere Besetzungszahl

$$\bar{n} = \frac{1}{\exp(\hbar\omega_z/k_B T) - 1} \quad (2.74)$$

definieren. Die Besetzungswahrscheinlichkeit  $P_n$  der Eigenzustände  $\psi_n(z)$  ist nach [107] durch  $P_n = \bar{n}^n (\bar{n} + 1)^{-(n+1)}$  gegeben, womit man direkt die zeitlich gemittelte, räumliche Verteilung der thermischen Ionenpositionen um die Gleichgewichtsposition  $\bar{z} = z^{(0)}$  erhält [192, 256]:

$$f(z) = \sum_{n=0}^{\infty} P_n |\psi_n(z)|^2 = e^{-\frac{(z-\bar{z})^2}{2\Delta z_{th}^2}}. \quad (2.75)$$

Dabei bezeichnet  $\langle z^2 \rangle = \Delta z_{th}^2 = (\bar{n} + 1/2) \hbar / (M\omega_z)$  die Varianz der räumlichen Gaußverteilung aus Gleichung (2.75).

Prinzipiell ist es nicht verwunderlich, dass der Random Walk des Ions in Impuls- und Ortsraum, sowohl zu einer Gaußverteilung seiner Positionen als auch seiner Geschwindigkeiten führt. Verursacht wird selbiger durch stochastisch wirkende Kräfte, wie z.B. den stochastischen Rückstoß durch Absorptions-Emissions-Zyklen in der Nähe des Doppler-Kühllimits oder durch fluktuierende elektrische Hintergrundfelder, die das Ion heizen können. Es handelt sich bei den, zeitlich aufeinander folgenden, hinzukommenden Positions- bzw. Geschwindigkeits-Vektoren um unabhängige Zufallsgrößen, die durch gleiche aber unabhängige Wahrscheinlichkeitsverteilungen charakterisiert werden können. Damit entspricht die Wahrscheinlichkeitsdichte der Summe dieser Zufallsgrößen (hier z.B. die zeitlich gemittelte Wahrscheinlichkeitsdichte  $f(z)$  des Aufenthaltsortes des Ions), nach der Herleitung des zentralen Grenzwertsatzes [167], einer Gaußverteilung.

Die Varianz  $\langle z^2 \rangle$  der räumlichen Gaußverteilung eines Ions im harmonischen Fallenpotential kann direkt mittels  $\langle E \rangle = \langle V \rangle + \langle T \rangle$  und dem Virialtheorem für den

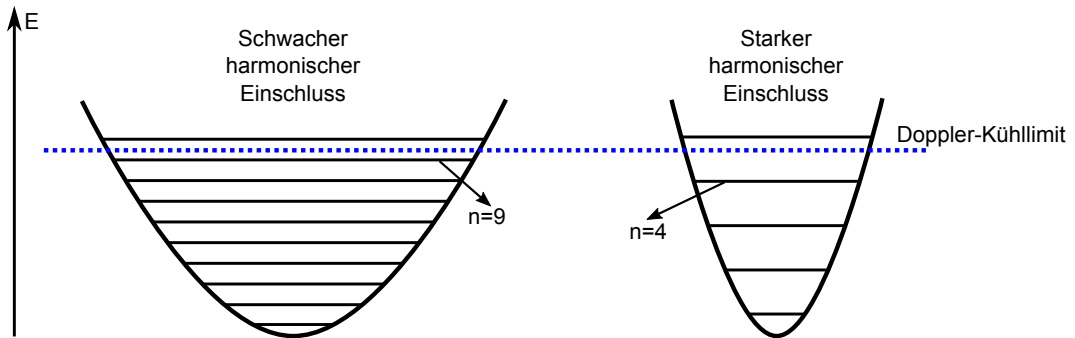
quantenmechanischen harmonischen Oszillator  $\langle V \rangle = \langle T \rangle$  durch

$$\langle E \rangle = 2 \langle V \rangle = M \langle z^2 \rangle \omega_z^2 \quad (2.76)$$

bestimmt werden, wenn man  $\langle E \rangle = \hbar \omega_z (\bar{n}(\omega_z, T) + 1/2)$  berücksichtigt. Die Experimente dieser Arbeit wurden für die Kühlionen im Weak-Binding-Limit, das durch  $\Gamma \gg \omega_z$  charakterisiert ist, durchgeführt. Typische axiale Fallenfrequenzen von der Größenordnung  $\omega_z = 2\pi \times 100 \text{ kHz}$  waren stets mehr als zwei Größenordnungen kleiner als die natürliche Linienbreite  $\Gamma = 2\pi \times 19.4 \text{ MHz}$  des verwendeten Kühlübergangs des  $\text{Be}^+$ -Ions. Die Kühlionen wurden folglich Doppler-Laser-gekühlt, aber nicht Seitenband-gekühlt. In Bezug auf das Doppler-Kühllimit  $T_D$  gilt im Weak-Binding-Limit weiterhin  $k_B T_D / (\hbar \omega_z) \gg 1$ . Für den  $\text{Be}^+$ -Ionen Kühlübergang kann als minimale Temperatur (bei optimalen Laserparametern) am Doppler-Kühllimit ein Wert von  $0.32 \text{ mK}$  erreicht werden. Aufgrund nicht-optimaler Laserparameter und zusätzlicher Heizraten, bedingt durch eine imperfekte Positionierung der Ionen entlang der Fallenachse [132], kann für die vorliegenden Experimente eine, um wenigstens eine Größenordnung, höhere Ionentemperatur erwartet werden, so dass hier (für  $f_z = 100 \text{ kHz}$ ) z.B.  $k_B T_D / (\hbar \omega_z) \approx 670 \gg 1$  gilt. Für  $\hbar \omega_z / (k_B T) \ll 1$  kann die Exponentialfunktion in  $\bar{n}$  in eine Taylor-Reihe bis zur ersten Ordnung entwickelt werden, so dass  $\bar{n} \approx k_B T / (\hbar \omega_z)$  gilt. Damit berechnet sich die Standardabweichung  $\Delta z_{th} = \sqrt{\langle z^2 \rangle}$  der räumlichen Gaußverteilung aus Gleichung (2.75) zu

$$\Delta z_{th} \approx \sqrt{\frac{k_B T}{M \omega_z^2}}. \quad (2.77)$$

Die Abhängigkeit der mittleren Besetzungszahl  $\bar{n}$  von der axialen Fallenfrequenz, und damit verbunden die Abhängigkeit der thermischen räumlichen Varianz des Ions von der axialen Fallenfrequenz, wird in Abbildung 2.47 illustriert.



**Abbildung 2.47:** Illustration der Abhängigkeit der zeitlich gemittelten Besetzungszahl  $\bar{n}(T)$ , für eine feste Temperatur, von der Fallenfrequenz des harmonischen Potentials. Ein stärkerer axialer Einschluss des Ions führt zu größeren Abständen zwischen den Energieeigenwerten des quantenmechanischen harmonischen Oszillators und damit zu einer niedrigeren mittleren Besetzungszahl bei gleicher Ionentemperatur. Damit kann ein Ion im starken harmonischen Potential leichter in den Grundzustand der Bewegung, mittels weiterführender Kühlmethode, gebracht werden [83].

Gleichung (2.77) fasst die Abhängigkeit der räumlichen Ausdehnung der mittleren Wahrscheinlichkeitsdichte eines einzelnen Ions im harmonischen Potential von Ionentemperatur und Fallenfrequenz zusammen. Daraus ergibt sich, dass die Ionentemperatur in zwei Dimensionen unter Gleichgewichtsbedingungen durch Abbildung der Bewegung des Ions gemessen werden kann.

Um die Ionentemperatur experimentell mittels Positions-Thermometrie bestimmen zu können, muss die Standardabweichung der gaußförmigen Positionsverteilung eines Ions um seine Gleichgewichtsposition gemessen werden. Das fluoreszierende Kühlion kann als sich bewegende Punkt-Lichtquelle angesehen werden. Damit besteht eine Möglichkeit der zweidimensionalen Temperaturbestimmung in der Aufnahme eines CCD-Bildes des, vom Kühlion emittierten, Fluoreszenzlichtes. Da die Integrationszeit bei der CCD-Aufnahme im Bereich von ms bis s liegt, ermöglicht eine solche Aufnahme prinzipiell die Messung der zeitlich gemittelten Wahrscheinlichkeitsdichte der Ionenposition. Da ein Abbildungssystem, abgesehen von Aberrationen, mindestens beugungslimitiert ist [259], wird ein Punkt nicht auf einen Punkt sondern eine Scheibe abgebildet, d.h. die wahre räumliche Verteilung der Ionenposition in der Paulfalle muss mit der Punktspreizfunktion (engl. point spread function) des Abbildungssystems gefaltet werden, die als Gaußfunktion angenähert werden kann. Die Faltung zweier Gaußfunktionen ergibt wieder eine Gaußfunktion, deren Varianz der Summe der Varianzen der beiden ursprünglichen Gaußfunktionen entspricht. Somit setzt sich die mit der CCD gemessene Varianz der Intensitätsverteilung wie folgt zusammen:

$$\Delta z_{CCD}^2 = \Delta z_{th}^2 + \Delta z_{PSF}^2, \quad (2.78)$$

wobei  $\Delta z_{PSF}$  für die Standardabweichung der, als gaußförmig angenäherten, Punktspreizfunktion steht. Experimentell wird typischerweise entweder eine zweidimensionale Gaußverteilung an die aufgenommene Intensitätsverteilung angefitet oder es wird die räumliche Verteilung des Fluoreszenzlichtes auf die jeweiligen Achsen projiziert und anschließend je ein eindimensionaler Gauß-Fit vorgenommen.

Um die Temperatur eines ko-kristallisierten HCIs mittels Positions-Thermometrie abschätzen zu können, reicht es nicht, ein einzelnes gespeichertes Kühlion zu betrachten, vielmehr kommt hier der räumlichen Ausdehnung der Fluoreszenz eines, dem HCI benachbarten,  $\text{Be}^+$ -Ions in einer gemischten Ionenkette, die entscheidende Bedeutung zu. Die Temperatur individueller Ionen einer Kette ist insofern ein weites Feld, als z.B. selbst ein einzelnes Ion verschiedene Temperaturen in axialer und radialer Richtung haben kann. Dies wurde u.a. in [232] experimentell für  $^{174}\text{Yb}^+$ -Ionen gezeigt, indem anisotrope Laser-Kühlbedingungen geschaffen wurden, konnten mittels Positions-Thermometrie hier Temperaturunterschiede zwischen axialer und radialer Richtung von zwei Größenordnungen gemessen werden (mehr als 20-fach stärkere Ausdehnung des Fluoreszenzlichtes in radialer im Gegensatz zu axialer Richtung). Auch die zweite CCD-Aufnahme eines Zwei-Ionen Mischkristalls in Abbildung 2.37 demonstriert eine radial deutlich stärker ausgedehnte Intensitätsverteilung des  $\text{Be}^+$ -Ionen-Fluoreszenzlichtes als in axialer Richtung, als Indikator für verschiedene Ionentemperaturen in axialer und transversaler Richtung. In Coulomb-Kristallen sind Temperaturgradienten zwischen einzelnen Ionen einer Kette oder zwischen den

Schalen eines dreidimensionalen Kristalls denkbar [144]. Dies kann z.B. durch positionsabhängige Heizraten aufgrund verschieden starker Excess-Mikrobewegung der Fall sein.

Das Äquivalent zur oben diskutierten mittleren Phononenzahl  $\bar{n}$  für ein einzelnes Ion im harmonischen Potential sind bei Ionenketten die Besetzungszahlen  $\bar{n}^{(p)}$  für die  $N$  voneinander unabhängigen, harmonischen Eigenmoden, deren Frequenzen den Eigenfrequenzen  $\omega^{(p)}$  der Ionenkette als schwingungsfähigem System entsprechen [227, 257].

Anknüpfend an das Unterkapitel „Eigenfrequenzen gemischter Ionenketten und  $Q/M$ -Identifikation“ und den oszillatorischen Lösungsansatz  $q(t)$  aus Gleichung (2.35) mit der Proportionalität

$$\vec{q} \propto A^{(p)} \vec{\nu}^{(p)} \quad (2.79)$$

stellt man fest, dass der Skalierungsfaktor  $A^{(p)}$  vom Bewegungszustand der Mode  $p$  und damit über dessen Darstellung im Fock-Raum

$$A^{(p)}(\bar{n}^{(p)}) = \sqrt{(2\bar{n}^{(p)} + 1)} A_0^{(p)} \quad (2.80)$$

von der Besetzungszahl der Mode abhängt. Auch hier gilt für die zeitlich gemittelte Phononenanzahl in der  $p$ -ten Eigenmode der Ionenkette, analog zum Fall des einzelnen Ions, die näherungsweise Beziehung  $\bar{n}^{(p)} \approx k_B T / (\hbar \omega^{(p)})$ , bis zum Doppler-Kühllimit im Bereich schwacher axialer Bindung. Dabei handelt es sich bei  $A_0^{(p)}$  in Gleichung (2.80) um die Bezeichnung für die Amplitude des Bewegungs-Grundzustandes. Ein Ausdruck für  $A_0^{(p)}$  kann man durch Betrachtung der kinetischen Energie  $\langle T_0 \rangle = 1/2 \langle E_0 \rangle = 1/4 \hbar \omega^{(p)}$  im Grundzustand des quantenmechanischen Oszillators erhalten. Mit dem allgemeinen Ausdruck  $\langle T \rangle = 1/2 \dot{\vec{q}}^T \tilde{M} \dot{\vec{q}}$  für die kinetische Energie und Ausnutzen von Gleichung (2.79), angewandt auf den Grundzustand, ergibt sich:

$$\frac{1}{2} \left( \omega^{(p)} A_0^{(p)} \right)^2 \left( \vec{\nu}^{(p)} \right)^T \tilde{M} \vec{\nu}^{(p)} = \frac{1}{4} \hbar \omega^{(p)}. \quad (2.81)$$

Damit lässt sich eine effektive Masse  $M_{eff} = \left( \vec{\nu}^{(p)} \right)^T \tilde{M} \vec{\nu}^{(p)}$ , für die Bewegung der Ionenkette in der  $p$ -ten Eigenmode, definieren und der folgende Ausdruck für die räumliche Ausdehnung der Grundzustands-Wellenfunktion für die  $p$ -te Mode aufstellen:

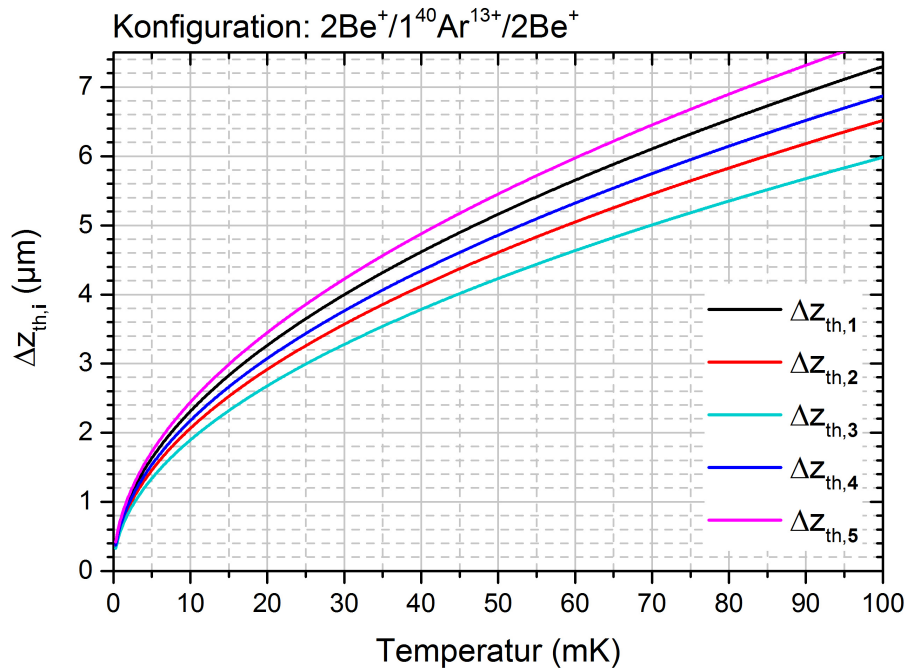
$$A_0^{(p)} = \sqrt{\frac{\hbar}{2 M_{eff}^{(p)} \omega^{(p)}}}. \quad (2.82)$$

Unter der Annahme, dass alle axialen Moden im thermischen Gleichgewicht miteinander bei der Temperatur  $T$  sind (was, je nach Heizursache nicht unbedingt gegeben sein muss, siehe [227]), erhält man für die Varianz  $(\Delta z_{th,i})^2$  der räumlichen Wahrscheinlichkeitsdichte-Verteilung des  $i$ -ten Ions einer Kette mit insgesamt

$N$  Ionen, in Analogie zu Gleichung (2.77) für ein einzelnes Ion, den Ausdruck:

$$\begin{aligned}
 (\Delta z_{th,i})^2 &= \left( A^{(1)} \nu_i^{(1)} \right)^2 + \dots + \left( A^{(N)} \nu_i^{(N)} \right)^2 \\
 &\approx k_B T \left[ \frac{(\nu_i^{(1)})^2}{M_{eff}^{(1)} (\omega^{(1)})^2} + \dots + \frac{(\nu_i^{(N)})^2}{M_{eff}^{(N)} (\omega^{(N)})^2} \right]. \quad (2.83)
 \end{aligned}$$

Die Varianz der räumlichen Wahrscheinlichkeitsdichte des  $i$ -ten Ions einer Kette von  $N$  Ionen enthält folglich prinzipiell Beiträge von der thermischen Anregung aller  $N$  Eigenmoden des Systems der Ionenkette. Der Beitrag der  $p$ -ten Eigenmode wird durch den, dem  $i$ -ten Ion entsprechenden, Eintrag des  $p$ -ten Eigenvektors mit  $(\nu_i^{(p)})^2$  gewichtet. Damit kann die thermisch bedingte räumliche Ausdehnung der Ionen-Fluoreszenz verschieden stark für die individuellen Ionen einer Kette sein. Dies wurde experimentell in [257] bestätigt. Abbildung 2.48 zeigt die, durch  $\Delta z_{th,i}$  charakterisierte, berechnete thermische Ausdehnung der individuellen Ionenpositionen in Abhängigkeit der Temperatur für das Beispiel der  $2\ ^9\text{Be}^+ / 1\ ^{40}\text{Ar}^{13+} / 2\ ^9\text{Be}^+$ -Ionenketten-Konfiguration. Die Berechnung, nach Gleichung (2.83), erfolgte für experimentell typische Parameter (siehe Bildunterschrift). Man erkennt zum einen die



**Abbildung 2.48:** Nach Gleichung (2.83) berechnete Standardabweichung  $\Delta z_{th,i}$  der gaußförmigen Fluoreszenzverteilung der individuellen Ionen einer Kette der Konfiguration  $2\ ^9\text{Be}^+ / 1\ ^{40}\text{Ar}^{13+} / 2\ ^9\text{Be}^+$ . Dargestellt in Abhängigkeit der Temperatur. Berechnet für eine axiale Fallenfrequenz eines einzelnen  $\text{Be}^+$ -Ions von 91.5 kHz und eine axiale Lichtdruckkraft von  $5 \times 10^{-20}$  N. Die Ionen der Kette sind von links nach rechts, in Ausbreitungsrichtung des Kühllasers, aufsteigend durchnummeriert.

Zunahme der thermisch bedingten Ausdehnung der räumlichen Wahrscheinlichkeitsdichte der individuellen Ionen mit der Temperatur und zum anderen, dass die Größe dieser Zunahme für die einzelnen Ionen verschieden ist. Je weiter außen in der Kette sich ein Ion befindet, desto größer die Ausdehnung, bei gleicher Temperatur. Ohne resultierende axiale Lichtdruckkraft wäre die Größe der Ausdehnung symmetrisch für gleichartige Ionen links und rechts der Fallenmitte. Abbildung 2.48 illustriert aber auch, dass eine stärkere räumliche Ausdehnung des Fluoreszenzlichtes nicht zwangsläufig mit einer erhöhten Temperatur einhergeht. Auch kohärente Bewegung kann, z.B. im Rahmen der Realisierung eines Phononen-Lasers, zur verstärkten räumlichen Ausdehnung der abgebildeten Ionenbewegung führen, die dann in der Form kein Maß für eine Temperatur mehr ist [260].

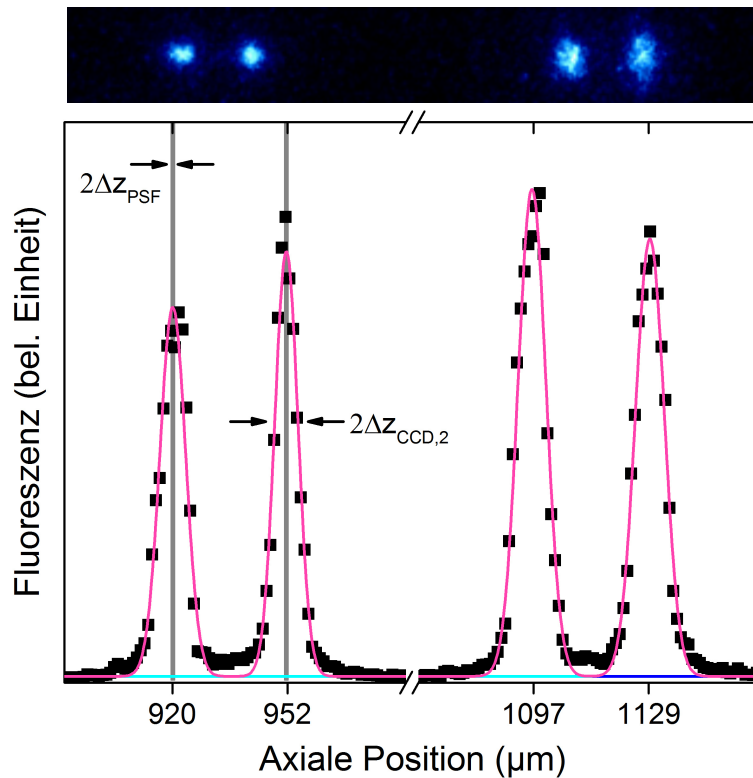
Weiterhin gilt, analog zum Einzelionen-Fall, dass die gaußförmige, thermische Verbreiterung mit der Punkt-Antwort des Abbildungssystems nach

$$(\Delta z_{CCD,i})^2 = (\Delta z_{th,i})^2 + (\Delta z_{PSF})^2 \quad (2.84)$$

für jedes Ion der Kette gefaltet werden muss.

Für die Aufnahmen dieses Unterkapitels wurde eine einzelne plano-konvexe Linse (Thorlabs LA4130) bei 8 K, zusammen mit einer vorgeschalteten Apertur mit einem Durchmesser von 5 mm, mit  $NA \approx 0.066$ , zur Abbildung der Ionen-Fluoreszenz auf die CCD-Kamera, eingesetzt. Dies führt, für den Fall eines beugungs-limitierten Abbildungssystems, nach  $\Delta z_{PSF} = 0.43\lambda/(2NA)$  [232], zu einer Standardabweichung von  $\Delta z_{PSF} \approx 1 \mu\text{m}$  der gaußförmig angenäherten Punktspreizfunktion. Ein Vergleich, wie in Abb. 2.49 beispielhaft gezeigt, zwischen Gauß-Fits und Datenpunkten legt den Schluss nahe, dass das verwendete Abbildungssystem nicht durch Beugungseffekte, sondern durch Aberrationen, wie z.B. Defokussierung und sphärische Aberrationen, limitiert war. Die Breite der Punktspreizfunktion lässt sich mit Hilfe der Gleichungen (2.84) und (2.83) bestimmen, in dem CCD-Aufnahmen eines einzelnen  $\text{Be}^+$ -Ions, für eine schrittweise Erhöhung der axialen Fallenfrequenz, bzgl.  $\Delta z_{CCD}$  ausgewertet werden. Dann können sowohl Temperatur als auch  $\Delta z_{PSF}$  aus einem Zwei-Parameter-Fit an die Daten extrahiert werden [192]. Da eine solche Messung nicht mit ausreichender Anzahl an Datenpunkten für die vorliegenden Experimente durchgeführt wurde, wird der beugungs-limitierte Wert für  $\Delta z_{PSF}$  zur Temperatur-Abschätzung verwendet. Dieser stellt somit eine untere Grenze für die Breite der Punkt-Antwort des Abbildungssystems dar und liefert somit eine obere Abschätzung für die Ionentemperatur.

Abbildung 2.49 illustriert das Vorgehen zur experimentellen Bestimmung der  $\Delta z_{th,i}$  der Kühlionen und damit auch indirekt der Temperatur des ko-kristallisierten HClIs am Beispiel der  $2^9\text{Be}^+/1^{40}\text{Ar}^{13+}/2^9\text{Be}^+$ -Ionenketten-Konfiguration. Ein gleichzeitiger Fit von vier Gauß-Funktionen an die Projektion der  $\text{Be}^+$ -Ionen-Fluoreszenz auf die Fallenachse liefert die folgenden Werte für die entsprechenden, gesuchten Standardabweichungen ( $\Delta z_{CCD,1}, \Delta z_{CCD,2}, \Delta z_{CCD,4}, \Delta z_{CCD,5}$ ), die im weiteren Verlauf stets auf diese Art als Vektor zusammengefasst werden: (3.6(1)  $\mu\text{m}$ , 3.2(1)  $\mu\text{m}$ , 3.9(1)  $\mu\text{m}$ , 4.0(1)  $\mu\text{m}$ ). Zum Vergleich, ob die Projektion der Fluoreszenz zur Bestimmung der Breite der Positionsverteilung geeignet ist, wurde zusätzlich ein vierfacher zweidimensionaler Gauss-Fit an die In-



**Abbildung 2.49:** CCD-Aufnahme einer gemischten Ionenkette in der  $2^9\text{Be}^+/1^{40}\text{Ar}^{13+}/2^9\text{Be}^+$ -Konfiguration. Die axiale Fallenfrequenz für ein einzelnes  $\text{Be}^+$ -Ion betrug 91.5 kHz, während die axiale Lichtdruckkraft mit  $5 \times 10^{-20}$  N abgeschätzt werden konnte (vergleiche die theoretische Berechnung der räumlichen Ausdehnung, gezeigt in Abb. 2.48, durchgeführt für die gleichen Parameter). Die Aufnahme wurde mit den Varianten A von Paulfallen-Elektronik (Excess-Mikrobewegung entlang der Fallenachse) und Abbildungssystem gewonnen. Darunter ist die Projektion der Ionen-Fluoreszenz auf die Fallenachse zu sehen. Links von der Unterbrechung der horizontalen Achse wird die prinzipielle Bestimmung von  $\Delta z_{\text{CCD},i}$  illustriert, wobei gleichzeitig die minimale Breite der Punkt-Antwort des Abbildungssystems eingezeichnet ist. Wie man anhand des Vergleichs zwischen Gauß-Fits und Datenpunkten erkennt, ist das Abbildungssystem nicht beugungslimitiert, womit die gaußförmig angenäherte Punkt-Antwort durch Abberationen (z.B. durch Defokussierung) verbreitert sein kann.

tensitätsverteilung der, in Abb. 2.49 gezeigten CCD-Aufnahme, durchgeführt. Mit folgendem Ergebnis für die Breiten entlang der horizontalen Bildachse: (3.7(1)  $\mu\text{m}$ , 3.1(1)  $\mu\text{m}$ , 4.0(1)  $\mu\text{m}$ , 4.0(1)  $\mu\text{m}$ ). Die Werte stimmen innerhalb der Fehler miteinander überein, so dass im Folgenden nur noch die Projektionen der CCD-Aufnahme auf die Fallenachse betrachtet werden.

Die Entfaltung mit der Punktspreizfunktion des Abbildungssystems der experimentell bestimmten Varianzen der räumlichen Verteilung des Fluoreszenzlichtes nach Gleichung (2.84), führt, unter Anwendung der Beziehung (2.83), zu dem Temperaturvektor (22(1) mK, 22(1) mK, 29(2) mK, 25(1) mK), der die, aus den individuell für die einzelnen Ionen einer Kette gemessenen, räumlichen Ausdehnungen ermittel-



ten Temperaturen enthält. Unter der Annahme, dass keine Temperaturgradienten innerhalb der Ionenkette existieren, erhält man somit eine obere Abschätzung für die axiale Ionentemperatur von  $T_{z,HCI} = T_{z,Be^+} < 25(4)$  mK. Unter der Annahme, dass z.B. nur die niedrigste Eigenmode der Ionenkette geheizt wird und kein thermisches Gleichgewicht zwischen den Moden herrscht, läge die axiale Ionentemperatur um ca. den Faktor 4 höher.

Die hier gezeigten CCD-Bilder von Ionenketten wurden, im Gegensatz zu den präsentierten Bildern dreidimensionaler Mischkristalle, alle mit Variante A der Paulfallen-Elektronik aufgenommen. In diesem Fall waren die Ionen entlang der Paulfallenachse (die normalerweise frei vom RF-Feld ist) axialer Mikrobewegung ausgesetzt. Das heißt die Ionen einer Kette führten eine, durch eine axiale Komponente des RF-Feldes getriebene, oszillatorische Bewegung entlang der Fallenachse aus. Da die verwendete RF-Frequenz in der Größenordnung von  $f_{RF} \approx 4$  MHz zu einer Bewegung führt, die wesentlich schneller als die Ionenbewegung aufgrund der Eigenmoden der Kette ist, führt die Excess-Mikrobewegung zu einer zusätzlichen räumlichen Verschmierung des Fluoreszenzsignals. Damit tritt, analog zur Punktspreizfunktion, eine zusätzliche Verbreiterung der tatsächlichen räumlichen Ausdehnung der Wahrscheinlichkeitsdichte individueller Ionen auf. Die Stärke der axialen Mikrobewegung hängt von der RF-Spannungsamplitude ab. Bei einer Messung der Mikrobewegung mit Hilfe eines PMTs nach der Photonenkorrelations-Methode [132] wurde, unter der gleichen RF-Spannungsamplitude wie sie bei der Produktion der Ionenketten herrschte, durch Verschiebung eines einzelnen Kühlions entlang der Fallenachse, festgestellt, dass die Amplitude der Mikrobewegung entlang der Fallenachse (in den gezeigten CCD-Aufnahmen von links nach rechts) zunahm. So dass, für die beiden linken  $Be^+$ -Ionen aus Abb. 2.49 eine Amplitude von  $2.7\mu\text{m}$  und für die beiden rechten eine Amplitude von  $3\mu\text{m}$  anzunehmen ist. Die Entfaltung der experimentell bestimmten Varianzen der räumlichen Verteilung des Fluoreszenzlichtes nach der, zu Gleichung (2.84) analogen, Beziehung  $(\Delta z_{CCD,i})^2 = (\Delta z_{th,i})^2 + (\Delta z_{PSF})^2 + (\Delta z_{MM,i})^2$  führt unter Anwendung der Näherung (2.83) zu dem Temperaturvektor (10(1) mK, 7(1) mK, 13(2) mK, 12(1) mK). Bei Berücksichtigung der räumlichen Verbreiterung des Fluoreszenz-Signals aufgrund der axialen Excess-Mikrobewegung und unter der Annahme, dass keine Temperaturgradienten innerhalb der Ionenkette existieren erhält man somit eine obere Abschätzung für die axiale Ionentemperatur von  $T_{z,HCI} = T_{z,Be^+} \leq 10(2)$  mK.



---

## Zusammenfassung und Ausblick

---

*„Cooling is the key to precision.“*  
Thomas Stöhlker, PEARL conference 2016

Laser-Spektroskopie hat sich als mächtiges Werkzeug der modernen Atomphysik erwiesen und ermöglicht es Erkenntnisse über die energetische Struktur von Atomen und Molekülen zu erhalten. Im Prinzip ist die Bindungsenergie atomarer Elektronen empfindlich für alle Ebenen der Physik des Standardmodells. Ihre Wellenfunktionen passen sich an alle kleinen Beiträge aller bekannten Wechselwirkungen an. Dieses universelle Sensitivitäts-Muster sollte auch auftreten, wenn neue Wechselwirkungen außerhalb des Standardmodells existieren.

Mehrere Übergänge in hochgeladenen Ionen wurden, aufgrund deutlicher Verstärkungsfaktoren ihrer Empfindlichkeit auf fundamentale Wechselwirkungen, in diesem Zusammenhang für Tests des Standardmodells vorgeschlagen. Da es sich hier um sehr kleine zu erwartende Verschiebungen von Übergangsfrequenzen handeln muss, in der Größenordnung  $10^{-19}\text{yr}^{-1}$  und kleiner für die Variation der Feinstrukturkonstanten nach astrophysikalischen Beobachtungen, bedarf es einer notwendigen, an die Fragestellung angepassten, Präzision der Frequenzmessung. Während für einfach geladene Ionen oder neutrale Atome, als Taktgeber optischer Uhren, heutzutage unglaubliche Präzisionsmessungen mit relativen Unsicherheiten von  $10^{-18}$  möglich sind, so liegt die Genauigkeit bei der optischen Spektroskopie von HCIs ungefähr zehn Größenordnungen niedriger. Die hier erzielte Coulomb-Kristallisation von HCIs, bei Temperaturen im  $< 10\text{mK}$ -Bereich in einer Paulfalle, ermöglicht unter anderem nachfolgende Experimente auf dem Weg zur Entwicklung optischer Uhren mit verbotenen Übergängen in HCIs als Taktgeber.

Die höchste Auflösung bei der bisherigen Laser-Spektroskopie von HCIs wurde durch konventionelle laser-induzierte Fluoreszenzspektroskopie, in-situ in einer EBIT, erreicht. Untersucht wurde hier der E1-verbotene Feinstruktur-Übergang  $^2\text{P}_{1/2} \leftrightarrow ^2\text{P}_{3/2}$  im Grundzustand von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen bei 441 nm. Der M1-Übergang wurde mit einer Auflösung von  $\approx 400\text{MHz}$  mittels eines gepulsten Farbstofflasers vermessen [42]. Der Übergang wurde schon mehrfach in der Crespo-Gruppe am MPIK untersucht. Die Übergangsenergie und die Lebensdauer von  $\approx 10\text{ms}$  enthalten große QED-Beiträge [261]. Der relativistische Kern-Rückstoßeﬀekt wurde in [41] durch die Vermessung der Isotopieverschiebung zwischen den Übergangs-Frequenzen

der jeweiligen M1-Übergänge in  $^{36}\text{Ar}^{13+}$  und  $^{40}\text{Ar}^{13+}$  untersucht. Es handelt sich folglich um einen für QED-Tests und Untersuchung von Isotopieverschiebungen interessanten Übergang. Dies war, neben der einfachen Handhabbarkeit eines Edelgases, der Grund für die Verwendung von  $\text{Ar}^{13+}$ -Ionen als Testobjekt für die Entwicklung einer Präparationsmethode für kalte HCIs in einer Paulfalle. Aufgrund der relativ großen natürlichen Linienbreite des Übergangs ist hier laser-induzierte Fluoreszenz-Spektroskopie im Weak-Binding-Limit von CryPTEx prinzipiell möglich. In Vorbereitung auf die Laser-Spektroskopie wurde daher ein schmalbandiges Lasersystem bei 441 nm mit einer Linienbreite und Langzeit-Frequenz-Stabilität in der Größenordnung von 100 kHz entwickelt [262]. Ausgangspunkt des Lasersystems ist ein Titan:Saphir-Laser bei 882 nm, der über eine Transfer-Cavity auf die  $^{85}\text{Rb}$  D<sub>2</sub>-Linie, für die benötigte Langzeitstabilität, referenziert wird. Hierfür wird die Länge der evakuierten Transfer-Cavity auf einen Referenz-Dioden-Laser bei 780 nm mittels Offset-Sideband-Locking stabilisiert. Die Frequenz des Referenz-Lasers selbst wird wiederum, mittels Modulationstransfer-Spektroskopie, auf den Übergang im Rb-Atom gelockt, während die Frequenz des Titan:Saphir-Lasers per Pound-Drever-Hall-Lock auf die Transfer-Cavity stabilisiert wird. Damit ist die kurzzeitige Linienbreite des Spektroskopie-Lasers durch die Transfer-Cavity gegeben, während die Langzeitstabilität (in der Größenordnung mehrerer Tage) gegenüber langfristigen Schwankungen durch die Referenzierung auf den atomaren Übergang gewährleistet wird. Die Frequenz des Titan:Saphir-Laserlichts wird mittels eines PPKTP-Kristalls in einem Überhöhungsresonator verdoppelt. Das so erzeugte Licht bei 441 nm steht dann für den Transport zum Experiment zur Verfügung. Das Lasersystem wurde an der PTB aufgebaut und anschließend ans MPIK umgezogen. Detaillierte Beschreibungen findet man in [189, 262]. Das Laserlicht bei 441 nm wird anschließend durch einen Double-Pass-AOM geleitet und durch eine polarisationserhaltende Einzelmoden-Faser über 50 m zur Paulfalle transportiert. Mittels des AOM-Aufbaus kann die Wellenlänge verschoben werden, ohne die Einkopplung in die Faser zu beeinträchtigen. Für die anfänglich genauere Suche des Übergangs wird das Laserlicht künstlich auf 10 MHz, durch Überlagerung weißen Rauschens an die RF des AOMs, verbreitert. Erste Tests des Messschemas wurden durchgeführt, hierfür wurde unter anderem ein Beat des Spektroskopie-Laserlichtes mit einem vorhandenen kommerziellen Frequenzkamm durchgeführt, um eine Absolutfrequenz-Messung vorzubereiten. In einem nächsten Schritt soll die Messung gleichzeitig mit einer Messung des Übergangs mittels eines optischen Gitterspektrometers an der EBIT erfolgen, um so den abzusuchenden Frequenzbereich zu minimieren.

In Hinblick auf die Uhren-Entwicklung wurde die Realisierung von Nachfolge-Experimenten begonnen. Hier ist man spektroskopisch an Übergängen deutlich kleinerer Linienbreite interessiert, so dass konventionelle laser-induzierte Fluoreszenzspektroskopie keine Option mehr darstellt. Da die HCIs sympathetisch gekühlt werden, kommen hier Methoden der Quantenlogik-Spektroskopie (QLS) [25] und ihrer Derivate [263–268] zum Einsatz. Diese Methoden erlauben die spektroskopische Untersuchung von Atomen, die keine geeigneten Übergänge zur Laserkühlung und Zustands-Detektion besitzen. Das so genannte Logik-Ion (hier:  $\text{Be}^+$ ) wird hier-

---

für, gemeinsam mit dem Spektroskopie-Ion (hier: Uhren-HCI), im harmonischen Potential einer Paulfalle gespeichert. Durch Applikation von Laserpulsen und das Ausnutzen der starken Coulomb-Kopplung zwischen den beiden Ionen, wird die Information über den elektronischen Zustand des HCIs, nach Spektroskopie des Uhren-Übergangs, auf das Logik-Ion übertragen. Hier kann der interne Zustand mit Methoden des Electron-Shelving mit hoher Effizienz detektiert werden (Idee: ein Absorptions-Ereignis verhindert Millionen von Streuereignissen, da das Elektron aus dem schnellen, geschlossenen Absorptions-Emissions-Zyklus herausgenommen wird [86, 269]).

Im Zusammenhang mit der Anwendung von QLS auf verbotene Übergänge in hochgeladenen Ionen und der angestrebten Präzision der Messung, werden aktuell, innerhalb der PTB-MPIK-Kollaboration, technische Upgrades des modularen Aufbaus zur Präparation kalter HCIs in einer kryogenen Paulfalle, umgesetzt (CryPTEx II). Da es sich bei den, für optische Uhren, relevanten HCIs um mäßig hohe Ladungszustände zwischen neunfach bis achtzehnfach geladenen Ionen handelt, wird die, für die Experimente dieser Arbeit verwendete, EBIT mit einem supraleitenden Magneten, durch eine kleinere, wartungsärmere Raumtemperatur-EBIT, basierend auf Permanentmagneten, ersetzt. Das hier in der Falle erzeugte Magnetfeld erreicht eine Stärke von 0.85 T und damit eine ausreichende Elektronenstrahldichte zur Produktion der relevanten HCIs. Des Weiteren wurde eine angepasste kryogene Zuleitung zur Paulfalle mit deutlich verstärkter Vibrationsentkopplung und Magnetfeldabschirmung aufgebaut. Experimentelle Details zu einem, von den Grundideen her ähnlichen, kryogenen Paulfallen-Aufbau der Blatt-Gruppe, findet man in [270]. Die Raumtemperatur-EBIT, sowie der Kältekopf der Paulfalle (mit ungedämpften Schwingungsamplituden von 5  $\mu\text{m}$ , die um mehrere Größenordnungen durch das Vibrations-Entkopplungs-Schema in den 10 nm-Bereich gedämpft werden sollen) befinden sich, zur thermischen und akustischen Entkopplung, in einem anderen Raum als die Spektroskopie-Paulfalle und die Lasersysteme. Die Abschirmung vor Magnetfeldern soll systematische Frequenzverschiebungen verhindern, während die Vibrationsreduktion Dekohärenz-Prozesse minimieren soll. Des Weiteren werden für die QLS-Experimente Paulfallen eingesetzt werden, die im Strong-Binding-Limit (statt wie bei CryPTEx I im Weak-Binding-Limit) arbeiten, so dass hier die Bewegung der Ionen in den Grundzustand des harmonischen Oszillatorpotentials der Falle gekühlt werden kann [127].

Die theoretische Suche nach Uhren-Übergängen in HCIs, die zusätzlich von Interesse zur Untersuchung fundamentaler Physik sind, wurde von den Autoren der Veröffentlichungen [9–17, 27] bewusst auf den Wellenlängenbereich 170 nm bis 3000 nm eingeschränkt, da in diesem Bereich extrem schmalbandige Laser ausreichender Leistung etabliert sind. Die große Mehrheit der Übergänge in HCIs liegt jedoch im EUV-Bereich (engl.: XUV-Bereich: 10 nm–124 nm). Diese Übergänge wurden ins-situ in einer EBIT bereits mit Hilfe von Freie-Elektronen-Lasern oder Synchrotron-Strahlung spektroskopisch untersucht [6, 271], allerdings ist die Kohärenz dieser Lichtquellen, im Vergleich mit dem Standard optischer Laser, limitiert. Seit etwas mehr als einem Jahrzehnt wurde jedoch insbesondere in den Gruppen um Jun Ye [272], Kjeld

Eikema [273–275] und Theodor Hänsch [276] die Skalierung von Frequenzkämmen in den EUV-Bereich erfolgreich vorangetrieben. Damit existieren mittlerweile Methoden zur Realisierung eines XUV-Frequenzkamms für direkte Frequenzkamm-Spektroskopie von atomaren Übergängen. Die Erkenntnisse dieser Entwicklungen dienen aktuell dem Aufbau eines XUV-Frequenzkamms, auf der Basis der Erzeugung hoher Harmonischer, durch starke Fokussierung von fs-Laserpulsen auf einen Gasjet unter Vakuum in einem Überhöhungsresonator (nach dem Vorbild von [272]), mit Wellenlängen kleiner als 100 nm [277].

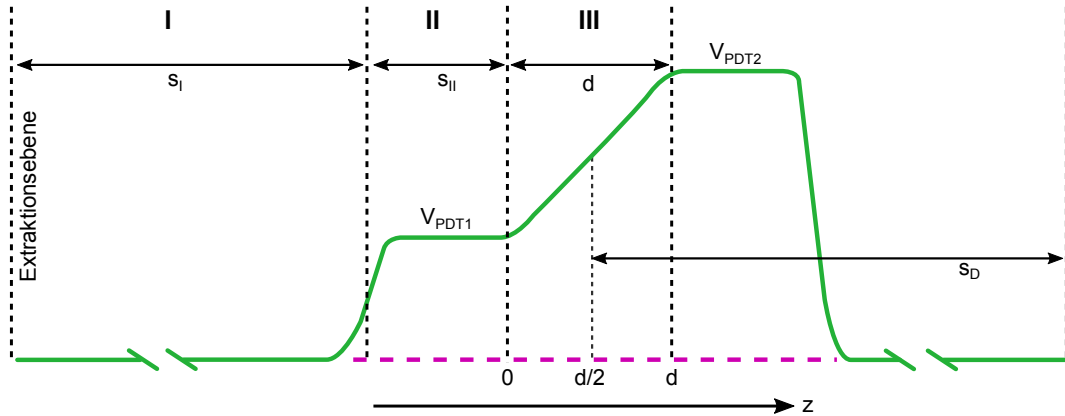
Im Gegensatz zu neutralen oder einfach geladenen Atomen besitzen HCIs, je nach Ladungszustand, eine hohe Stabilität gegenüber EUV-Photonen bzgl. Photoionisation oder Verbreiterung von Übergängen zwischen inneren Schalen (der Extremfall  $\text{U}^{91+}$ -Ions bleibt sogar bis zu Photonenenergien von 140 keV stabil [278]). Damit könnten HCIs als zukünftige Frequenzstandards im EUV-Bereich dienen.

Die in dieser Arbeit demonstrierte Coulomb-Kristallisation hochgeladener Ionen in einer Paulfalle, mit gleichzeitiger sympathetischer Kühlung in die Nähe des Doppler-Kühl-Limits des  $\text{Be}^+$ -Kühlions, stellt zusammenfassend der hoch-präzisen Laserspektroskopie eine ganze neue Klasse atomarer Systeme zur Verfügung. Diese bieten interessante Möglichkeiten für optische Uhren und Frequenzstandards im EUV-Bereich, sowie als Ressourcen zur Untersuchung fundamentaler Physik, z.B. durch Tests auf mögliche Drifts fundamentaler Naturkonstanten.

### A.1 Theoretisches Modell des Vorkühlprozesses

Für ein einfaches, eindimensionales theoretisches Modell des Vorkühlprozesses mittels der beiden gezackten Elektroden (vergleiche Kapitel 2.3), wird die Bewegung der HCIs eines extrahierten Ionenpaketes mit einheitlichem  $Q/M$ -Verhältnis, in drei Regionen unterteilt. Diese sind in Abbildung A.1 zusammen mit den entscheidenden Bezeichnungen skizziert.

Im Folgenden wird stets die Bewegung des  $i$ -ten HCIs mit kinetischer Energie von  $QeV_i$  unmittelbar nach der Extraktion sowie die Bewegung des Normions eines HCI-Paketes betrachtet. Das Normion ist dabei als ein HCI definiert, das genau eine



**Abbildung A.1:** Skizze der Bewegungs-Bereiche, Wegstrecken und des Potentialverlaufs als Grundlage für die 1-dim. Modellierung der longitudinalen Phasenraumkompression beim Abbremsen von HCI-Paketen. In einem HCI-Paket befinden sich ausschließlich Ionen mit gleichem  $Q/M$ -Verhältnis. Die longitudinale kinetische Energieverteilung unmittelbar nach der Extraktion wird als gaussförmig mit mittlerer kinetischer Energie  $Qe\bar{V}_{extr}$  und Standardabweichung  $QeV_\sigma$  angenommen.

kinetische Energie von  $Qe\bar{V}_{extr}$  unmittelbar nach der Extraktion besitzt.  
In den drei Bereichen I-III gilt:

### Bereich I

Normion und i-tes HCI bewegen sich auf der  $s_I = 1527$  mm langen Strecke geradlinig gleichförmig mit kinetischen Energien  $Qe\bar{V}_{extr}$  bzw.  $QeV_i$  und damit mit den Geschwindigkeiten

$$\bar{v}^I = \sqrt{(\bar{V}_{extr}) 2Qe/M} \quad \text{bzw.} \quad v_i^I = \sqrt{(V_i) 2Qe/M}. \quad (\text{A.1})$$

### Bereich II

Normion und i-tes HCI bewegen sich auf der  $s_{II} = 95$  mm langen Strecke geradlinig gleichförmig mit kinetischen Energien  $Qe(\bar{V}_{extr} - V_{PDT1})$  bzw.  $Qe(V_i - V_{PDT1})$  und damit mit den Geschwindigkeiten

$$\bar{v}^{II} = \sqrt{(\bar{V}_{extr} - V_{PDT1}) 2Qe/M} \quad \text{bzw.} \quad v_i^{II} = \sqrt{(V_i - V_{PDT1}) 2Qe/M}. \quad (\text{A.2})$$

### Bereich III

Das elektrische Feld  $E_z(z)$  entlang der Symmetrieachse  $z$  im Überlappungs-Bereich mit Länge  $d$  der gezackten Elektroden ergibt sich aus dem linear ansteigenden Abbremspotential  $V(z)$  zu  $E_z(z) = -dV(z)/dz = (V_{PDT2} - V_{PDT1})/d$ . Damit werden alle HCIs, die in den Bereich III eintreten, gleichmäßig beschleunigt abgebremst, mit der Beschleunigung

$$a = -(V_{PDT2} - V_{PDT1}) Qe/(Md). \quad (\text{A.3})$$

Angenommen die mittlere kinetische Energie des HCI-Paketes von der ursprünglichen Extraktions-Energie  $Qe\bar{V}_{extr}$  soll auf die, für den zweiten Abbremsvorgang direkt vor der Paulfalle notwendige mittlere Energie  $Qe\bar{V}_f$  verringert werden. Dann kann der dafür notwendige Schaltzeitpunkt  $t_S$  für das gleichzeitige Herunterpulsen der beiden gezackten Elektroden, unter der Bedingung

$$\frac{(V_{PDT2} + V_{PDT1})}{2} = \bar{V}_{extr} - \bar{V}_f \quad \text{mit} \quad 0 < V_{PDT1} < V_{PDT2} \quad (\text{A.4})$$

mit der Flugzeit des Normions bis zum Mittelpunkt  $d/2$  des Überlappungs-Bereichs gleichgesetzt werden:

$$t_S = \tilde{t}_S + \frac{s_{II}}{\bar{v}_{II}} + \frac{s_I}{\bar{v}_I} \quad \text{mit} \quad \frac{d}{2} = \frac{1}{2} a \tilde{t}_S^2 + \bar{v}_{II} \tilde{t}_S. \quad (\text{A.5})$$



Einsetzen der Beziehungen aus Gleichungen (A.3) und (A.2) und Auflösen der zweiten Gleichung nach  $\tilde{t}_S$  liefert:

$$\tilde{t}_S = \frac{d}{(V_{PDT2} - V_{PDT1})} \sqrt{\frac{2}{Qe/M}} \times \left[ \sqrt{\bar{V}_{extr} - V_{PDT1}} - \sqrt{\bar{V}_{extr} - \frac{1}{2}(V_{PDT2} - V_{PDT1})} \right]. \quad (\text{A.6})$$

Der Zeitanteil  $\tilde{t}_S$  des gemeinsamen Schaltzeitpunktes kann zur Bestimmung der Position  $z_i$  des i-ten HCIs im Ionenpaket innerhalb des Überlappungs-Bereichs der gezackten Abbremsselektroden verwendet werden. Dabei ist der Nullpunkt  $z_i = 0$  durch den Beginn des Überlappungs-Bereiches definiert. Für  $z_i$  gilt die Beziehung:

$$z_i = \frac{1}{2}a(\tilde{t}_S - (t_i - \bar{t}))^2 + v_i^{\text{II}}(\tilde{t}_S - (t_i - \bar{t})), \quad (\text{A.7})$$

dabei stehen  $t_i$  bzw.  $\bar{t}$  für die Flugzeiten des i-ten HCIs bzw. des Normions durch die beiden ersten Regionen I und II. Damit ist  $(t_i - \bar{t})$  die Zeitdifferenz zwischen dem Eintritt des i-ten HCIs und des Normions in den Bereich III.

Für die Zeitdifferenz  $(t_i - \bar{t})$  ergibt sich mittels der Gleichungen (A.1) und (A.2) :

$$(t_i - \bar{t}) = \frac{s_I}{\sqrt{2Qe/M}} \left( \frac{1}{\sqrt{V_i}} - \frac{1}{\sqrt{\bar{V}_{extr}}} \right) + \frac{s_{II}}{\sqrt{2Qe/M}} \left( \frac{1}{\sqrt{V_i - V_{PDT1}}} - \frac{1}{\sqrt{\bar{V}_{extr} - V_{PDT1}}} \right). \quad (\text{A.8})$$

Da die Zeitdifferenzen aus Gleichung (A.8) allesamt proportional zu  $1/(\sqrt{Q/M})$  sind, während die Beschleunigung  $a$  proportional zu  $Q/M$  und die Geschwindigkeit  $v_i^{\text{II}}$  proportional zu  $\sqrt{Q/M}$  ist, sieht man direkt an Gleichung (A.7), dass die Positionsverteilung der HCIs eines Ionenpaketes zum Schaltzeitpunkt im Überlappungs-Bereich unabhängig von Ladung und Masse der HCIs ist. Sie hängt vielmehr nur von den angelegten Spannungen und Abständen, d.h. vom Gesamt-Potentialverlauf ab. Die gleiche Unabhängigkeit von  $Q$  und  $M$  gilt folglich auch für die, auf die Ladung  $Qe$ , normierte Energieverteilung der abgebremsten und vorgekühlten HCI-Pakete. Denn das Abbremspotential  $V_{ir}$ , welches das i-te HCI zum Schaltzeitpunkt erfahren hat, ist nach

$$V_{ir} = \frac{(V_{PDT2} - V_{PDT1})}{d} z_i + V_{PDT1} \quad (\text{A.9})$$

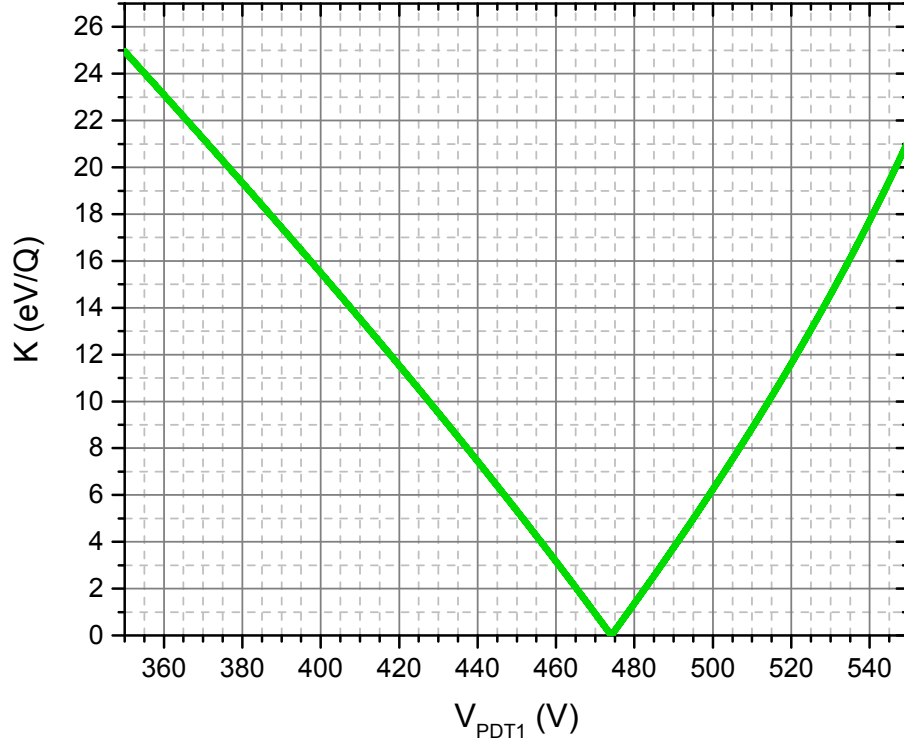
ebenfalls ausschließlich abhängig von den angelegten Abbremsspannungen, den Dimensionen der einzelnen Bewegungsbereiche, der Extraktions- und gewünschten Abbrems-Spannung bei der Paulfalle. Um die Positions- und Energieverteilungen eines HCI-Paketes unmittelbar nach dem Schaltzeitpunkt zu bestimmen

werden in Gleichung (A.7) die Gleichungen (A.6), (A.8), (A.3) und (A.2) eingesetzt. Dann erhält man nach einigen Termumformungen und unter Verwendung von  $(V_{PDT2} - V_{PDT1}) = 2(\bar{V}_{extr} - \bar{V}_f - V_{PDT1})$  aus Gleichung (A.4) den folgenden geschlossenen Ausdruck für die Position  $z_i(V_i, \bar{V}_{extr}, \bar{V}_f, V_{PDT1}, s_I, s_{II}, d)$  des i-ten HCIs innerhalb des Überlappungs-Bereichs zum Schaltzeitpunkt:

$$\begin{aligned}
 z_i = & \frac{d}{2(\bar{V}_{extr} - \bar{V}_f - V_{PDT1})} \left( \sqrt{\bar{V}_{extr} - V_{PDT1}} - \sqrt{\bar{V}_f} \right) \\
 & \times \left( 2\sqrt{V_i - V_{PDT1}} - \sqrt{\bar{V}_{extr} - V_{PDT1}} + \sqrt{\bar{V}_f} \right) \\
 & + \left( -\sqrt{V_i - V_{PDT1}} + \sqrt{\bar{V}_{extr} - V_{PDT1}} - \sqrt{\bar{V}_f} \right) \\
 & \times \left[ s_I \left( \frac{1}{\sqrt{V_i}} - \frac{1}{\sqrt{\bar{V}_{extr}}} \right) + s_{II} \left( \frac{1}{\sqrt{V_i - V_{PDT1}}} - \frac{1}{\sqrt{\bar{V}_{extr} - V_{PDT1}}} \right) \right] \\
 & - \frac{(\bar{V}_{extr} - \bar{V}_f - V_{PDT1})}{2d} \left[ s_I^2 \left( \frac{1}{V_i} + \frac{1}{\bar{V}_{extr}} - \frac{2}{\sqrt{V_i \bar{V}_{extr}}} \right) + s_{II}^2 \right. \\
 & \left. \times \left( \frac{1}{V_i - V_{PDT1}} + \frac{1}{\bar{V}_{extr} - V_{PDT1}} - \frac{2}{\sqrt{(V_i - V_{PDT1})(\bar{V}_{extr} - V_{PDT1})}} \right) \right].
 \end{aligned} \tag{A.10}$$

Setzt man diesen Ausdruck für  $z_i$  in Gleichung (A.9) zusammen mit  $(V_{PDT2} - V_{PDT1}) = 2(\bar{V}_{extr} - \bar{V}_f - V_{PDT1})$  ein, so erhält man direkt eine Beziehung für das auf das i-te HCI im Ionenpaket wirkende Abbremspotential  $V_{ir}(V_i, \bar{V}_{extr}, \bar{V}_f, V_{PDT1}, s_I/d, s_{II}/d)$ , welches über  $QeV_{ir}$  der kinetischen Energie des abgebremsten i-ten HCIs entspricht. Der Ausdruck lautet:

$$\begin{aligned}
 V_{ir} = & V_{PDT1} + \left( \sqrt{\bar{V}_{extr} - V_{PDT1}} - \sqrt{\bar{V}_f} \right) \\
 & \times \left( 2\sqrt{V_i - V_{PDT1}} - \sqrt{\bar{V}_{extr} - V_{PDT1}} + \sqrt{\bar{V}_f} \right) \\
 & + 2(\bar{V}_{extr} - \bar{V}_f - V_{PDT1}) \left( -\sqrt{V_i - V_{PDT1}} + \sqrt{\bar{V}_{extr} - V_{PDT1}} - \sqrt{\bar{V}_f} \right) \\
 & \times \left[ \frac{s_I}{d} \left( \frac{1}{\sqrt{V_i}} - \frac{1}{\sqrt{\bar{V}_{extr}}} \right) + \frac{s_{II}}{d} \left( \frac{1}{\sqrt{V_i - V_{PDT1}}} - \frac{1}{\sqrt{\bar{V}_{extr} - V_{PDT1}}} \right) \right] \\
 & - (\bar{V}_{extr} - \bar{V}_f - V_{PDT1})^2 \left[ \left( \frac{s_I}{d} \right)^2 \left( \frac{1}{V_i} + \frac{1}{\bar{V}_{extr}} - \frac{2}{\sqrt{V_i \bar{V}_{extr}}} \right) + \left( \frac{s_{II}}{d} \right)^2 \right. \\
 & \left. \times \left( \frac{1}{V_i - V_{PDT1}} + \frac{1}{\bar{V}_{extr} - V_{PDT1}} - \frac{2}{\sqrt{(V_i - V_{PDT1})(\bar{V}_{extr} - V_{PDT1})}} \right) \right].
 \end{aligned} \tag{A.11}$$



**Abbildung A.2:** Nach Gleichung (A.12) berechneter und auf die Ladung normierter energetischer Abstand  $K$  nach Abbremsen und Vorkühlen der HCIs mit Extraktions-Energien  $Qe(\bar{V}_{extr} + V_\sigma)$  und  $Qe(\bar{V}_{extr} - V_\sigma)$ . Dargestellt in Abhängigkeit der Abbremsspannung  $V_{PDT1}$  und berechnet für typische experimentelle Werte von  $Qe\bar{V}_{extr} = 680$  eV,  $QeV_\sigma = 10.6$  eV und  $Qe\bar{V}_f = 130$  eV. Die Funktion  $K(V_{PDT1})$  besitzt für einen spezifischen Wert von  $V_{PDT1}$  eine Singularität, dies ist aber nicht der Fall für die reale Energieverteilung der Ionen, bei der sich eine endliche minimale Breite einstellt.

Ist man nur an der, auf die Ladung  $Qe$  der HCIs normierten longitudinalen kinetischen Energieverteilung interessiert (Einheit in eV/Q, im Sinne von eV pro Ladungszustand, wie Beschleuniger-Physiker Energien in eV pro Nukleon angeben), so kann man direkt Gleichung (A.11) verwenden, die dann für beliebige extrahierte HCI-Pakete mit einheitlichem  $Q/M$ -Verhältnis gilt.

Um die Spannungscombination ( $V_{PDT1}$ ,  $V_{PDT2}$ ) zu bestimmen, die bei gegebener longitudinaler kinetischer Energieverteilung nach Extraktion und gewünschter mittlerer kinetischer Energie für die Injektion in die Paulfalle, zur minimalen Energiebreite der Energieverteilung im HCI-Paket führt, kann der Wert von  $V_{PDT1}$  bestimmt werden, der den energetischen Abstand nach Abbremsen und Vorkühlen der HCIs mit Extraktions-Energien  $Qe(\bar{V}_{extr} + V_\sigma)$  und  $Qe(\bar{V}_{extr} - V_\sigma)$  minimiert. Der, auf die HCI Ladung  $Qe$  normierte energetische Abstand  $K$  ist dabei über

$$K = \left| \bar{V}_{extr} + V_\sigma - V_{ir} \left( V_i = \bar{V}_{extr} + V_\sigma, \bar{V}_{extr}, \bar{V}_f, V_{PDT1}, s_I/d, s_{II}/d \right) - \bar{V}_f \right| \quad (A.12) \\ + \left| \bar{V}_{extr} - V_\sigma - V_{ir} \left( V_i = \bar{V}_{extr} - V_\sigma, \bar{V}_{extr}, \bar{V}_f, V_{PDT1}, s_I/d, s_{II}/d \right) - \bar{V}_f \right|$$

gegeben.

Mit der Kenntnis über  $z_i$  und  $V_{ir}$  nach Gleichungen (A.10) und (A.11) kann auch die Flugzeitverteilung eines extrahierten HCI-Paketes an einem beliebigen Ort hinter der Abbremsseinheit, welcher auf der Symmetrieachse der zylindersymmetrischen Elektroden liegt, bestimmt werden. Die Flugzeit  $TOF_i(V_i, \bar{V}_{extr}, \bar{V}_f, V_{PDT1}, s_I, s_{II}, d, s_D, Q/M)$  des i-ten HCIs kann wie folgt berechnet werden:

$$TOF_i = \frac{1}{\sqrt{Qe/M}} \left[ \frac{s_I}{\sqrt{2V_i}} + \frac{s_{II}}{\sqrt{2(V_i - V_{PDT1})}} + \frac{s_D - (z_i - d/2)}{\sqrt{2(V_i - V_{ir})}} \right. \\ \left. + d \frac{\sqrt{2(\bar{V}_{extr} - V_{PDT1})}}{2(\bar{V}_{extr} - \bar{V}_f - V_{PDT1})} \right. \\ \left. - \sqrt{\left( d \frac{\sqrt{2(\bar{V}_{extr} - V_{PDT1})}}{2(\bar{V}_{extr} - \bar{V}_f - V_{PDT1})} \right)^2 - \frac{d^2}{2(\bar{V}_{extr} - \bar{V}_f - V_{PDT1})}} \right]. \quad (A.13)$$

Dabei bezeichnet  $s_D$  die Wegstrecke zwischen dem Mittelpunkt des Überlappungsbereichs der gezackten Elektroden und einem beliebigen Punkt in geradliniger Verlängerung der Abbremsseinheit in Richtung Paulfalle (z.B. die Position von EM1 oder die Position von (BD1) oder (BD2)).

---

## Publikationsliste

---

*„...the most important unit of time?“*  
*„A Lifetime.“*  
Howard Bell

### Journal-Artikel

T. Leopold, L. Schmöger, S. Feuchtenbeiner, C. Grebing, P. Micke, N. Scharnhorst, I.D. Leroux, J.R. Crespo López-Urrutia, P.O. Schmidt, A tunable low-drift laser stabilized to an atomic reference, Appl. Phys. B (2016) 122: 236

L. Schmöger, M. Schwarz, T. M. Baumann, O. O. Versolato, B. Piest, T. Pfeifer, J. Ullrich, P. O. Schmidt, and J. R. Crespo López-Urrutia, Deceleration, precooling, and multi-pass stopping of highly charged ions in  $\text{Be}^+$  Coulomb crystals, Rev. Sci. Instrum. 86, 103111 (2015)

L. Schmöger, J.R. Crespo López-Urrutia, Heiße Ionen kalt gestellt , Physik in unserer Zeit Vol. 46, pp. 163- 165 (2015)

L. Schmöger, O. O. Versolato, M. Schwarz, M. Kohnen, A. Windberger, B. Piest, S. Feuchtenbeiner, J. Pedregosa-Gutierrez, T. Leopold, P. Micke, A. K. Hansen, T. M. Baumann, M. Drewsen, J. Ullrich, P. O. Schmidt, J. R. Crespo López-Urrutia., Coulomb crystallization of highly charged ions, Science Vol. 347 no. 6227 pp. 1233-1236 (2015)

### Konferenz-Vorträge

Eingeladener Vortrag auf der 18<sup>th</sup> International Conference on the Physics of Highly Charged Ions (HCI), Kielce (Poland): Coulomb Crystallization of Highly Charged Ions, September 2016

Eingeladener Vortrag auf der 12<sup>th</sup> European Conference on Atoms Molecules and Photons (ECAMP), Frankfurt (Germany): Coulomb Crystallization of Highly Char-

ged Ions, September 2016

Eingeladener Vortrag auf dem 6<sup>th</sup> International Workshop on the Physics at EBITs and Advanced Research Light Sources (PEARL), Shanghai (China): Coulomb crystallisation of highly charged ions, Juni 2016

Eingeladener Vortrag auf dem 30<sup>th</sup> European Frequency and Time Forum (EFTF), York (England): Cold highly charged ions for highest precision spectroscopy, April 2016

Eingeladener Vortrag auf dem COOL15 - International Workshop on Beam Cooling and Related Topics, Newport News (USA): Coulomb crystallization of highly charged ions, Oktober 2015

47<sup>th</sup> Conference of the European Group on Atomic Systems: Coulomb crystallization of highly charged ions, Riga (Lettland), Juli 2015

DPG-Frühjahrstagung, Heidelberg (Germany): Cold highly charged ions for novel optical clocks and the search for  $\alpha$  variation, März 2015

Eröffnungsvortrag Fachsession Quantenphysik, 17. Physikerinnentagung, Heidelberg (Germany): Investigating possible drifts in  $\alpha$  with cold highly charged ions, Oktober 2013

## Konferenz-Poster

L. Schmöger et al., 4<sup>th</sup> European Conference on Trapped Ions (ECTI), Arosa (Switzerland): Cold highly charged ions for novel optical clocks and the search for  $\alpha$  variation, August 2016

L. Schmöger et al., 25<sup>th</sup> International Conference on Atomic Physics (ICAP), Seoul (South Korea): Cold highly charged ions for novel optical clocks and the search for  $\alpha$  variation, Juli 2016

L. Schmöger et al., 66<sup>th</sup> Lindau Nobel Laureate Meeting, Lindau (Germany): Cold highly charged ions for novel optical clocks and the search for  $\alpha$  variation, Juni 2016

L. Schmöger et al., 8<sup>th</sup> Symposium on Frequency Standards and Metrology, Potsdam (Germany): Coulomb crystallization of highly charged ions, September 2015

L. Schmöger et al., 3<sup>rd</sup> European Conference on Trapped Ions (ECT), Mainz (Germany): Stopping and sympathetic cooling of highly charged ions in Coulomb crystals, September 2014

---

L. Schmöger et al., 46<sup>th</sup> EGAS: European Group on Atomic Systems, Lille (France): Towards precision laser spectroscopy with cold highly charged ions, Juli 2014

L. Schmöger et al., DPG-Frühjahrstagung, Berlin (Germany): Towards precision laser spectroscopy with cold highly charged ions und An electrodynamic system for highly charged ion transfer to a Paul trap, März 2014

L. Schmöger et al., IonTech2: Techniques for Trapped Ions COST-IOTA Workshop, Paris (France): Towards cold highly charged ion experiments in a cryogenic Paul Trap, Oktober 2013

L. Schmöger et al., 16<sup>th</sup> International Conference on the Physics of Highly Charged Ions, Heidelberg (Germany): A low energy beamline for HCI transfer from an EBIT to a Paul Trap, September 2012





---

## Literaturverzeichnis

---

- [1] M. Vogel, W. Quint. Trap-assisted precision spectroscopy of highly charged ions. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **42**, 154016 (2009).
- [2] S. Sturm, *et al.*. High-precision measurement of the atomic mass of the electron. *Nature* **506**, 467 (2014).
- [3] S. Sturm, F. Köhler, G. Werth. The g-factor of highly charged ions. *Journal of Physics: Conference Series* **599**, 012043 (2015).
- [4] F. Köhler, *et al.*. Isotope dependence of the Zeeman effect in lithium-like calcium. *Nature Communications* **7**, 10246 (2016).
- [5] J. D. Gillaspay. Highly charged ions. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **34**, R93 (2001).
- [6] S. Bernitt, *et al.*. An unexpectedly low oscillator strength as the origin of the FeXVII emission problem. *Nature* **492**, 225 (2012).
- [7] K. Schnorr, *et al.*. CORONIUM IN THE LABORATORY: MEASURING THE Fe XIV GREEN CORONAL LINE BY LASER SPECTROSCOPY. *The Astrophysical Journal* **776**, 121 (2013).
- [8] C. Shah, *et al.*. LABORATORY MEASUREMENTS COMPELLINGLY SUPPORT A CHARGE-EXCHANGE MECHANISM FOR THE “DARK MATTER”  $\sim 3.5$  keV X-Ray LINE. *The Astrophysical Journal* **833**, 52 (2016).
- [9] J. C. Berengut, V. A. Dzuba, V. V. Flambaum. Enhanced Laboratory Sensitivity to Variation of the Fine-Structure Constant using Highly Charged Ions. *Physical Review Letters* **105** (2010).
- [10] J. C. Berengut, V. A. Dzuba, V. V. Flambaum, A. Ong. Electron-Hole Transitions in Multiply Charged Ions for Precision Laser Spectroscopy and Searching for Variations in  $\alpha$ . *Physical Review Letters* **106** (2011).
- [11] V. A. Dzuba, A. Derevianko, V. V. Flambaum. High-precision atomic clocks with highly charged ions: Nuclear-spin-zero  $f^{12}$ -shell ions. *Physical Review A* **86** (2012).

- [12] A. Derevianko, V. A. Dzuba, V. V. Flambaum. Highly Charged Ions as a Basis of Optical Atomic Clockwork of Exceptional Accuracy. *Physical Review Letters* **109** (2012).
- [13] J. C. Berengut, V. A. Dzuba, V. V. Flambaum, A. Ong. Optical Transitions in Highly Charged Californium Ions with High Sensitivity to Variation of the Fine-Structure Constant. *Physical Review Letters* **109** (2012).
- [14] M. Safronova, *et al.*. Highly Charged Ions for Atomic Clocks, Quantum Information, and Search for  $\alpha$  variation. *Physical Review Letters* **113** (2014).
- [15] V. Yudin, A. Taichenachev, A. Derevianko. Magnetic-Dipole Transitions in Highly Charged Ions as a Basis of Ultraprecise Optical Clocks. *Physical Review Letters* **113** (2014).
- [16] V. A. Dzuba, V. V. Flambaum, H. Katori. Optical clock sensitive to variations of the fine-structure constant based on  $\text{Ho}^{14+}$  ion. *Physical Review A* **91** (2015).
- [17] V. A. Dzuba, M. S. Safronova, U. I. Safronova, V. V. Flambaum. Actinide ions for testing the spatial  $\alpha$ -variation hypothesis. *Physical Review A* **92** (2015).
- [18] T. Pruttivarasin, *et al.*. Michelson–Morley analogue for electrons using trapped ions to test Lorentz symmetry. *Nature* **517**, 592 (2015).
- [19] V. A. Dzuba, *et al.*. Strongly enhanced effects of Lorentz symmetry violation in entangled  $\text{Yb}^+$  ions. *Nature Physics* **12**, 465 (2016).
- [20] S. Schiller. Hydrogenlike Highly Charged Ions for Tests of the Time Independence of Fundamental Constants. *Physical Review Letters* **98** (2007).
- [21] J.-P. Uzan. Varying Constants, Gravitation and Cosmology. *Living Reviews in Relativity* **14** (2011).
- [22] J. Bagdonaite, *et al.*. A Stringent Limit on a Drifting Proton-to-Electron Mass Ratio from Alcohol in the Early Universe. *Science* **339**, 46 (2012).
- [23] R. Godun, *et al.*. Frequency Ratio of Two Optical Clock Transitions in  $^{171}\text{Yb}^+$  and Constraints on the Time Variation of Fundamental Constants. *Physical Review Letters* **113** (2014).
- [24] N. Huntemann, *et al.*. Improved Limit on a Temporal Variation of  $m_p/m_e$  from Comparisons of  $\text{Yb}^+$  and Cs Atomic Clocks. *Physical Review Letters* **113** (2014).
- [25] P. O. Schmidt. Spectroscopy Using Quantum Logic. *Science* **309**, 749 (2005).
- [26] J. C. López-Urrutia. The visible spectrum of highly charged ions: A window to fundamental physics. *Canadian Journal of Physics* **86**, 111 (2008).
- [27] P. O. Schmidt, J. R. C. López-Urrutia. Hochgeladene Taktgeber. *Physik Journal* **10**, 25 (2016).

- [28] J. K. Webb, *et al.*. Indications of a Spatial Variation of the Fine Structure Constant. *Physical Review Letters* **107** (2011).
- [29] J. C. Berengut, V. V. Flambaum. Manifestations of a spatial variation of fundamental constants in atomic and nuclear clocks, Oklo, meteorites, and cosmological phenomena. *EPL (Europhysics Letters)* **97**, 20006 (2012).
- [30] J. B. Whitmore, M. T. Murphy. Impact of instrumental systematic errors on fine-structure constant measurements with quasar spectra. *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society* **447**, 446 (2014).
- [31] T. Rosenband, *et al.*. Frequency Ratio of  $\text{Al}^+$  and  $\text{Hg}^+$  Single-Ion Optical Clocks; Metrology at the 17th Decimal Place. *Science* **319**, 1808 (2008).
- [32] N. Huntemann, *et al.*. High-Accuracy Optical Clock Based on the Octupole Transition in  $^{171}\text{Yb}^+$ . *Physical Review Letters* **108** (2012).
- [33] N. Huntemann, C. Sanner, B. Lipphardt, C. Tamm, E. Peik. Single-Ion Atomic Clock with  $3 \times 10^{-18}$  Systematic Uncertainty. *Physical Review Letters* **116** (2016).
- [34] S. Falke, *et al.*. A strontium lattice clock with  $3 \times 10^{-17}$  inaccuracy and its frequency. *New Journal of Physics* **16**, 073023 (2014).
- [35] A. D. Ludlow, M. M. Boyd, J. Ye, E. Peik, P. Schmidt. Optical atomic clocks. *Reviews of Modern Physics* **87**, 637 (2015).
- [36] C. W. Chou, D. B. Hume, T. Rosenband, D. J. Wineland. Optical Clocks and Relativity. *Science* **329**, 1630 (2010).
- [37] L. von der Wense, *et al.*. Direct detection of the  $^{229}\text{Th}$  nuclear clock transition. *Nature* **533**, 47 (2016).
- [38] A. Cingöz, *et al.*. Limit on the Temporal Variation of the Fine-Structure Constant Using Atomic Dysprosium. *Physical Review Letters* **98** (2007).
- [39] N. Leefer, C. T. M. Weber, A. Cingöz, J. R. Torgerson, D. Budker. New Limits on Variation of the Fine-Structure Constant Using Atomic Dysprosium. *Physical Review Letters* **111** (2013).
- [40] A. Windberger, *et al.*. Identification of the Predicted 5s-4f Level Crossing Optical Lines with Applications to Metrology and Searches for the Variation of Fundamental Constants. *Physical Review Letters* **114** (2015).
- [41] R. S. Orts, *et al.*. Exploring Relativistic Many-Body Recoil Effects in Highly Charged Ions. *Physical Review Letters* **97** (2006).
- [42] V. Mäckel, R. Klawitter, G. Brenner, J. R. C. López-Urrutia, J. Ullrich. Laser Spectroscopy on Forbidden Transitions in Trapped Highly Charged  $\text{Ar}^{13}$  Ions. *Physical Review Letters* **107** (2011).

- [43] D. J. Larson, J. C. Bergquist, J. J. Bollinger, W. M. Itano, D. J. Wineland. Sympathetic cooling of trapped ions: A laser-cooled two-species nonneutral ion plasma. *Physical Review Letters* **57**, 70 (1986).
- [44] M. Drewsen, *et al.*. Ion Coulomb crystals: a tool for studying ion processes. *International Journal of Mass Spectrometry* **229**, 83 (2003).
- [45] L. Gruber, J. P. Holder, D. Schneider. Formation of Strongly Coupled Plasmas from MultiComponent Ions in a Penning Trap. *Physica Scripta* **71**, 60 (2005).
- [46] Z. Andelkovic, *et al.*. Laser cooling of externally produced Mg ions in a Penning trap for sympathetic cooling of highly charged ions. *Physical Review A* **87** (2013).
- [47] M. Vogel, *et al.*. Resistive and sympathetic cooling of highly-charged-ion clouds in a Penning trap. *Physical Review A* **90** (2014).
- [48] T. Kwapień, U. Eichmann, W. Sandner. Sympathetic cooling of laser-produced doubly charged ions in a few-ion crystal. *Physical Review A* **75** (2007).
- [49] C. J. Campbell, A. G. Radnaev, A. Kuzmich. Wigner Crystals  $^{229}\text{Th}$  for Optical Excitation of the Nuclear Isomer. *Physical Review Letters* **106** (2011).
- [50] M. Schwarz, *et al.*. Cryogenic linear Paul trap for cold highly charged ion experiments. *Review of Scientific Instruments* **83**, 083115 (2012).
- [51] O. O. Versolato, *et al.*. Decay Rate Measurement of the First Vibrationally Excited State of  $\text{MgH}^+$  in a Cryogenic Paul Trap. *Physical Review Letters* **111** (2013).
- [52] H. Dehmelt. A Single Atomic Particle Forever Floating at Rest in Free Space: New Value for Electron Radius. *Physica Scripta* **T22**, 102 (1988).
- [53] W. Paul. Elektromagnetische Käfige für geladene und neutrale Teilchen (Nobel-Vortrag). *Angewandte Chemie* **102**, 780 (1990).
- [54] W. Paul. Electromagnetic traps for charged and neutral particles. *Reviews of Modern Physics* **62**, 531 (1990).
- [55] S. Earnshaw. On the Nature of the Molecular Forces which Regulate the Constitution of the Luminiferous Ether. *Trans. Camb. Phil. Soc.* **7**, 97 (1842).
- [56] H. Dehmelt. Experiments with an isolated subatomic particle at rest. *Reviews of Modern Physics* **62**, 525 (1990).
- [57] C. Schneider, M. Enderlein, T. Huber, T. Schaetz. Optical trapping of an ion. *Nature Photonics* **4**, 772 (2010).
- [58] C. Cormick, T. Schaetz, G. Morigi. Trapping ions with lasers. *New Journal of Physics* **13**, 043019 (2011).

- [59] M. Enderlein, T. Huber, C. Schneider, T. Schaetz. Single Ions Trapped in a One-Dimensional Optical Lattice. *Physical Review Letters* **109** (2012).
- [60] V. N. Gheorghe, F. G. Major, G. Werth. *Charged Particle Traps* (Springer, 2010).
- [61] L. S. Brown, G. Gabrielse. Geonium theory: Physics of a single electron or ion in a Penning trap. *Reviews of Modern Physics* **58**, 233 (1986).
- [62] T. Huber, A. Lambrecht, J. Schmidt, L. Karpa, T. Schaetz. A far-off-resonance optical trap for a B ion. *Nature Communications* **5**, 5587 (2014).
- [63] C. E. Pearson, *et al.*. Experimental investigation of planar ion traps. *Physical Review A* **73** (2006).
- [64] W. Guan, S. Joseph, J. H. Park, P. S. Krstic, M. A. Reed. Paul trapping of charged particles in aqueous solution. *Proceedings of the National Academy of Sciences* **108**, 9326 (2011).
- [65] N. Kjærgaard, K. Mølhave, M. Drewsen. Design and construction of a linear Paul trap for the study of crystalline beams. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **540**, 209 (2005).
- [66] M. Drewsen, C. Brodersen, L. Hornekær, J. S. Hangst, J. P. Schifffer. Large Ion Crystals in a Linear Paul Trap. *Physical Review Letters* **81**, 2878 (1998).
- [67] W. Paul, M. Raether. Das elektrische Massenfiter. *Zeitschrift fuer Physik* **140**, 262 (1955).
- [68] W. Paul, H. P. Reinhard, U. von Zahn. Das elektrische Massenfiter als Massenspektrometer und Isotopentrenner. *Zeitschrift für Physik* **152**, 143 (1958).
- [69] U. V. Zahn. Monopole Spectrometer, a New Electric Field Mass Spectrometer. *Review of Scientific Instruments* **34**, 1 (1963).
- [70] D. R. Denison. Operating Parameters of a Quadrupole in a Grounded Cylindrical Housing. *Journal of Vacuum Science and Technology* **8**, 266 (1971).
- [71] M. Drewsen, A. Brøner. Harmonic linear Paul trap: Stability diagram and effective potentials. *Physical Review A* **62** (2000).
- [72] R. F. Wuerker, H. Shelton, R. V. Langmuir. Electrodynamic Containment of Charged Particles. *Journal of Applied Physics* **30**, 342 (1959).
- [73] D. J. Wineland, W. M. Itano. Laser cooling of atoms. *Physical Review A* **20**, 1521 (1979).
- [74] J. C. Maxwell. *A Treatise on Electricity and Magnetism* (Cambridge University Press (CUP), 2009).

- [75] A. Einstein. Zur Quantentheorie der Strahlung. *Physikalische Zeitschrift* **18**, 121–128 (1917).
- [76] R. Frisch. Experimenteller Nachweis des Einsteinschen Strahlungsrueckstosses. *Zeitschrift fuer Physik* **86**, 42 (1933).
- [77] A. Kastler. Quelques suggestions concernant la production optique et la détection optique d'une inégalité de population des niveaux de quantification spatiale des atomes. Application à l'expérience de Stern et Gerlach et à la résonance magnétique. *Journal de Physique et le Radium* **11**, 255 (1950).
- [78] A. Kastler. Optical Methods for Studying Hertzian Resonances. *Science* **158**, 214 (1967).
- [79] T. H. Maiman. Stimulated Optical Radiation in Ruby. *Nature* **187**, 493 (1960).
- [80] D. J. Wineland, R. E. Drullinger, F. L. Walls. Radiation-Pressure Cooling of Bound Resonant Absorbers. *Physical Review Letters* **40**, 1639 (1978).
- [81] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. Toschek, H. Dehmelt. Optical-Sideband Cooling of Visible Atom Cloud Confined in Parabolic Well. *Physical Review Letters* **41**, 233 (1978).
- [82] W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. E. Toschek, H. Dehmelt. Localized visible  $\text{Ba}^+$  mono-ion oscillator. *Physical Review A* **22**, 1137 (1980).
- [83] F. Diedrich, J. C. Bergquist, W. M. Itano, D. J. Wineland. Laser Cooling to the Zero-Point Energy of Motion. *Physical Review Letters* **62**, 403 (1989).
- [84] D. J. Wineland, J. J. Bollinger, W. M. Itano. Laser-Fluorescence Mass Spectroscopy. *Physical Review Letters* **50**, 628 (1983).
- [85] C. Chou, D. Hume, J. Koelemeij, D. Wineland, T. Rosenband. Frequency Comparison of Two High-Accuracy  $\text{Al}^+$  Optical Clocks. *Physical Review Letters* **104** (2010).
- [86] J. C. Bergquist, R. G. Hulet, W. M. Itano, D. J. Wineland. Observation of Quantum Jumps in a Single Atom. *Physical Review Letters* **57**, 1699 (1986).
- [87] W. Nagourney, J. Sandberg, H. Dehmelt. Shelved optical electron amplifier: Observation of quantum jumps. *Physical Review Letters* **56**, 2797 (1986).
- [88] T. Sauter, W. Neuhauser, R. Blatt, P. E. Toschek. Observation of Quantum Jumps. *Physical Review Letters* **57**, 1696 (1986).
- [89] J. I. Cirac, P. Zoller. Quantum Computations with Cold Trapped Ions. *Physical Review Letters* **74**, 4091 (1995).
- [90] D. J. Wineland. Nobel Lecture: Superposition, entanglement, and raising Schrödinger's cat. *Reviews of Modern Physics* **85**, 1103 (2013).

- [91] S. Haroche. Nobel Lecture: Controlling photons in a box and exploring the quantum to classical boundary. *Reviews of Modern Physics* **85**, 1083 (2013).
- [92] W. D. Phillips, H. Metcalf. Laser Deceleration of an Atomic Beam. *Physical Review Letters* **48**, 596 (1982).
- [93] W. Ertmer, R. Blatt, J. L. Hall, M. Zhu. Laser Manipulation of Atomic Beam Velocities: Demonstration of Stopped Atoms and Velocity Reversal. *Physical Review Letters* **54**, 996 (1985).
- [94] J. Prodan, *et al.*. Stopping Atoms with Laser Light. *Physical Review Letters* **54**, 992 (1985).
- [95] S. Chu, L. Hollberg, J. E. Bjorkholm, A. Cable, A. Ashkin. Three-dimensional viscous confinement and cooling of atoms by resonance radiation pressure. *Physical Review Letters* **55**, 48 (1985).
- [96] S. Chu. Nobel Lecture: The manipulation of neutral particles. *Reviews of Modern Physics* **70**, 685 (1998).
- [97] W. D. Phillips. Nobel Lecture: Laser cooling and trapping of neutral atoms. *Reviews of Modern Physics* **70**, 721 (1998).
- [98] C. N. Cohen-Tannoudji. Nobel Lecture: Manipulating atoms with photons. *Reviews of Modern Physics* **70**, 707 (1998).
- [99] E. A. Cornell, C. E. Wieman. Nobel Lecture: Bose-Einstein condensation in a dilute gas, the first 70 years and some recent experiments. *Reviews of Modern Physics* **74**, 875 (2002).
- [100] W. Ketterle. Nobel lecture: When atoms behave as waves: Bose-Einstein condensation and the atom laser. *Reviews of Modern Physics* **74**, 1131 (2002).
- [101] R. J. Glauber. Nobel Lecture: One hundred years of light quanta. *Reviews of Modern Physics* **78**, 1267 (2006).
- [102] J. L. Hall. Nobel Lecture: Defining and measuring optical frequencies. *Reviews of Modern Physics* **78**, 1279 (2006).
- [103] T. W. Hänsch. Nobel Lecture: Passion for precision. *Reviews of Modern Physics* **78**, 1297 (2006).
- [104] W. M. Itano, D. J. Wineland. Laser cooling of ions stored in harmonic and Penning traps. *Physical Review A* **25**, 35 (1982).
- [105] S. Stenholm. The semiclassical theory of laser cooling. *Reviews of Modern Physics* **58**, 699 (1986).
- [106] P. v. d. S. Harold Metcalf. *Laser Cooling and Trapping* (Springer-Verlag GmbH, 1999).

- [107] D. Leibfried, R. Blatt, C. Monroe, D. Wineland. Quantum dynamics of single trapped ions. *Reviews of Modern Physics* **75**, 281 (2003).
- [108] M. Knoop, N. Madsen, R. C. Thompson. *PHYSICS WITH TRAPPED CHARGED PARTICLES* (IMPERIAL COLLEGE PRESS, 2014).
- [109] C. A. Doppler. Ueber das farbige Licht der Doppelsterne und einiger anderer Gestirne des Himmels. *Abh Königl Böhm Ges Wiss* **2**, 465 (1842).
- [110] C. J. J. Brian H. Bransden. *Physics of Atoms and Molecules* (Prentice Hall, 2003).
- [111] D. Budker, D. F. Kimball, D. P. DeMille. *Atomic Physics. An Exploration through Problems and Solutions.* (Oxford University Press, 2012).
- [112] C. Foot. *Atomic Physics* (Oxford University Press, 2004).
- [113] C. B. Zhang, D. Offenberger, B. Roth, M. A. Wilson, S. Schiller. Molecular-dynamics simulations of cold single-species and multispecies ion ensembles in a linear Paul trap. *Physical Review A* **76** (2007).
- [114] A. Einstein. Ueber die von der molekularkinetischen Theorie der Waerme geforderte Bewegung von in ruhenden Fluessigkeiten suspendierten Teilchen.. *Annalen der Physik* **322**, 549–560 (1905).
- [115] R. Brown. A brief account of microscopical observations made in the months of June, July and August, 1827, on the particles contained in the pollen of plants; and on the general existence of active molecules in organic and inorganic bodies. *Philosophical Magazine* **4**, 161–173 (1828).
- [116] J. P. Gordon, A. Ashkin. Motion of atoms in a radiation trap. *Physical Review A* **21**, 1606 (1980).
- [117] M. Marcianti, C. Champenois, A. Calisti, J. Pedregosa-Gutierrez, M. Knoop. Ion dynamics in a linear radio-frequency trap with a single cooling laser. *Physical Review A* **82** (2010).
- [118] J. H. V. Nguyen, *et al.*. Challenges of laser-cooling molecular ions. *New Journal of Physics* **13**, 063023 (2011).
- [119] P. Yzombard, M. Hamamda, S. Gerber, M. Doser, D. Comparat. Laser Cooling of Molecular Anions. *Physical Review Letters* **114** (2015).
- [120] L. Schmoger, *et al.*. Coulomb crystallization of highly charged ions. *Science* **347**, 1233 (2015).
- [121] J. C. Bergquist, W. M. Itano, D. J. Wineland. Recoilless optical absorption and Doppler sidebands of a single trapped ion. *Physical Review A* **36**, 428 (1987).



- [122] H. A. Klein, A. S. Bell, G. P. Barwood, P. Gill. Laser cooling of trapped  $\text{Yb}^+$ . *Applied Physics B Photophysics and Laser Chemistry* **50**, 13 (1990).
- [123] A. A. Madej, J. D. Sankey. Single, trapped  $\text{Sr}^+$  atom: laser cooling and quantum jumps by means of the  $fd^2D_{5/2} - 5S^2S_{1/2}$  transition. *Optics Letters* **15**, 634 (1990).
- [124] S. Urabe, *et al.*. Laser cooling of a single  $\text{Ca}^+$  ion: Observation of quantum jumps. *Applied Physics B Photophysics and Laser Chemistry* **57**, 367 (1993).
- [125] J. I. Cirac, R. Blatt, P. Zoller, W. D. Phillips. Laser cooling of trapped ions in a standing wave. *Physical Review A* **46**, 2668 (1992).
- [126] C. F. Roos. Controlling the quantum state of trapped ions. Dissertation. Universität Innsbruck (2000).
- [127] C. Monroe, *et al.*. Resolved-Sideband Raman Cooling of a Bound Atom to the 3D Zero-Point Energy. *Physical Review Letters* **75**, 4011 (1995).
- [128] T. Brunner, *et al.*. TITANs digital RFQ ion beam cooler and buncher, operation and performance. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **676**, 32 (2012).
- [129] F. R. Brunner. Entwurf und Aufbau einer kryogenen, linearen Paul-Falle für hochgeladene Ionen. Diplomarbeit. Universität Heidelberg (2010).
- [130] M. Schwarz. Lasermanipulation von rotationsgeköhlten Molekülonen in einer neuen kryogenen Paul-Falle. Doktorarbeit. Universität Heidelberg (2012).
- [131] P. F. Herskind, A. Dantan, M. Albert, J. P. Marler, M. Drewsen. Positioning of the rf potential minimum line of a linear Paul trap with micrometer precision. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **42**, 154008 (2009).
- [132] D. J. Berkeland, J. D. Miller, J. C. Bergquist, W. M. Itano, D. J. Wineland. Minimization of ion micromotion in a Paul trap. *Journal of Applied Physics* **83**, 5025 (1998).
- [133] N. Herschbach, K. Pyka, J. Keller, T. E. Mehlstäubler. Linear Paul trap design for an optical clock with Coulomb crystals. *Applied Physics B* **107**, 891 (2011).
- [134] J. Keller, H. L. Partner, T. Burgermeister, T. E. Mehlstäubler. Precise determination of micromotion for trapped-ion optical clocks. *Journal of Applied Physics* **118**, 104501 (2015).
- [135] J. Stark. Design ultrastabiler Hochfrequenzfelder für die Langzeitspeicherung hochgeladener Ionen. Masterarbeit (2015).

- [136] R. Drullinger, D. Wineland, J. Bergquist. High-Resolution Optical Spectra of Laser Cooled Ions. *Appl. Phys.* **22**, 365 (1980).
- [137] C. J. Myatt, E. A. Burt, R. W. Ghrist, E. A. Cornell, C. E. Wieman. Production of Two Overlapping Bose-Einstein Condensates by Sympathetic Cooling. *Physical Review Letters* **78**, 586 (1997).
- [138] P. Rowe, *et al.*. Sympathetic Crystallization of Trapped Ions. *Physical Review Letters* **82**, 2071 (1999).
- [139] M. G. Raizen, J. M. Gilligan, J. C. Bergquist, W. M. Itano, D. J. Wineland. Ionic crystals in a linear Paul trap. *Physical Review A* **45**, 6493 (1992).
- [140] S. Schiller, C. Lämmerzahl. Molecular dynamics simulation of sympathetic crystallization of molecular ions. *Physical Review A* **68** (2003).
- [141] A. Ostendorf, *et al.*. Sympathetic Cooling of Complex Molecular Ions to Millikelvin Temperatures. *Physical Review Letters* **97** (2006).
- [142] P. Blythe, B. Roth, U. Fröhlich, H. Wenz, S. Schiller. Production of Ultracold Trapped Molecular Hydrogen Ions. *Physical Review Letters* **95** (2005).
- [143] L. Hilico, *et al.*. Preparing single ultra-cold antihydrogen atoms for free-fall in GBAR. *International Journal of Modern Physics: Conference Series* **30**, 1460269 (2014).
- [144] J. B. Wübbena, S. Amairi, O. Mandel, P. O. Schmidt. Sympathetic cooling of mixed-species two-ion crystals for precision spectroscopy. *Physical Review A* **85** (2012).
- [145] N. Kjaergaard, L. Hornekaer, A. Thommesen, Z. Videsen, M. Drewsen. Isotope selective loading of an ion trap using resonance-enhanced two-photon ionization. *Applied Physics B* **71**, 207 (2000).
- [146] S. Gulde, *et al.*. Simple and efficient photo-ionization loading of ions for precision ion-trapping experiments. *Applied Physics B* **73**, 861 (2001).
- [147] D. Lucas, *et al.*. Isotope-selective photoionization for calcium ion trapping. *Physical Review A* **69** (2004).
- [148] U. Tanaka, I. Morita, S. Urabe. Selective loading and laser cooling of rare calcium isotope  $^{43}\text{Ca}^+$ . *Applied Physics B* **89**, 195 (2007).
- [149] A. V. Steele, L. R. Churchill, P. F. Griffin, M. S. Chapman. Photoionization and photoelectric loading of barium ion traps. *Physical Review A* **75** (2007).
- [150] B. Wang, J. W. Zhang, C. Gao, L. J. Wang. Highly efficient and isotope selective photo-ionization of barium atoms using diode laser and LED light. *Optics Express* **19**, 16438 (2011).

- [151] G. Leschhorn, T. Hasegawa, T. Schaetz. Efficient photo-ionization for barium ion trapping using a dipole-allowed resonant two-photon transition. *Applied Physics B* **108**, 159 (2012).
- [152] M. Brownnutt, *et al.*. Controlled photoionization loading of  $^{88}\text{Sr}^+$  for precision ion-trap experiments. *Applied Physics B* **87**, 411 (2007).
- [153] K. Vant, J. Chiaverini, W. Lybarger, D. J. Berkeland. Photoionization of strontium for trapped-ion quantum information processing (2007).
- [154] M. Schioppo, *et al.*. A compact and efficient strontium oven for laser-cooling experiments. *Review of Scientific Instruments* **83**, 103101 (2012).
- [155] M. Johanning, *et al.*. Resonance-enhanced isotope-selective photoionization of YbI for ion trap loading. *Applied Physics B* **103**, 327 (2011).
- [156] L. Deslauriers, *et al.*. Efficient photoionization loading of trapped ions with ultrafast pulses. *Physical Review A* **74** (2006).
- [157] D. R. Leibbrandt, *et al.*. Laser ablation loading of a surface-electrode ion trap. *Physical Review A* **76** (2007).
- [158] R. Hendricks, D. Grant, P. Herskind, A. Dantan, M. Drewsen. An all-optical ion-loading technique for scalable microtrap architectures. *Applied Physics B* **88**, 507 (2007).
- [159] K. Zimmermann, M. V. Okhapkin, O. A. Herrera-Sancho, E. Peik. Laser ablation loading of a radiofrequency ion trap. *Applied Physics B* **107**, 883 (2012).
- [160] M. Cetina, A. Grier, J. Campbell, I. Chuang, V. Vuletić. Bright source of cold ions for surface-electrode traps. *Physical Review A* **76** (2007).
- [161] K. J. Ross, B. Sonntag. High temperature metal atom beam sources. *Review of Scientific Instruments* **66**, 4409 (1995).
- [162] S. Eberle. Photoionisation des Beryllium Atoms. Masterarbeit (2013).
- [163] S. Miyamoto. A theory of the rate of sublimation. *Transactions of the Faraday Society* **29**, 794 (1933).
- [164] C. B. Alcock, V. P. Itkin, M. K. Horrigan. Vapour Pressure Equations for the Metallic Elements: 298-2500K. *Canadian Metallurgical Quarterly* **23**, 309 (1984).
- [165] *CRC Handbook of Chemistry and Physics* (CRC Press, 2011).
- [166] G. W. C. Kaye, T. H. Laby. *Tables of Physical and Chemical Constants* (Longman, 1995).
- [167] F. Schwabl. *Statistische Mechanik* (Springer-Verlag GmbH, 2006).

- [168] R. Moccia, P. Spizzo. Two-photon transition probabilities and photoionisation cross section calculations of Be. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **18**, 3555 (1985).
- [169] M. T. Smith, K. T. Taylor, C. W. Clark. R-matrix theory of two-photon absorption: application of beryllium and carbon. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **25**, 3985 (1992).
- [170] L. V. Keldysh. Ionization in the Field of a Strong Electromagnetic Wave. *JETP* **20**, 1307 (1965).
- [171] J. E. Daily, R. Gommers, E. A. Cummings, D. S. Durfee, S. D. Bergeson. Two-photon photoionization of the Ca 4s3d  $^1D_2$  level in an optical dipole trap. *Physical Review A* **71** (2005).
- [172] C.-P. S. Ingolf Volker Hertel. *Atome, Molekuele und optische Physik 1* (Springer-Verlag GmbH, 2015).
- [173] G. S. Hurst, M. G. Payne, S. D. Kramer, J. P. Young. Resonance ionization spectroscopy and one-atom detection. *Reviews of Modern Physics* **51**, 767 (1979).
- [174] D.-S. Kim, H.-L. Zhou, S. T. Manson, S. S. Tayal. Photoionization of the excited 1s<sup>2</sup>2s2p  $^1,3P^0$  states of atomic beryllium. *Physical Review A* **64** (2001).
- [175] L. Turner. Collective effects on equilibria of trapped charged plasmas. *Physics of Fluids* **30**, 3196 (1987).
- [176] H.-Y. Lo, *et al.*. All-solid-state continuous-wave laser systems for ionization, cooling and quantum state manipulation of beryllium ions. *Applied Physics B* **114**, 17 (2013).
- [177] C. Webb. *Laser Physics* (OXFORD UNIV PR, 2010).
- [178] G. D. Boyd, D. A. Kleinman. Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams. *Journal of Applied Physics* **39**, 3597 (1968).
- [179] R. W. P. Drever, *et al.*. Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator. *Applied Physics B Photophysics and Laser Chemistry* **31**, 97 (1983).
- [180] R. L. Targat, J.-J. Zondy, P. Lemonde. 75%-Efficiency blue generation from an intracavity PPKTP frequency doubler. *Optics Communications* **247**, 471 (2005).
- [181] J. J. Bollinger, J. S. Wells, D. J. Wineland, W. M. Itano. Hyperfine structure of the 2p  $^2P_{1/2}$  state in  $^9\text{Be}^+$ . *Physical Review A* **31**, 2711 (1985).
- [182] A. E. Kramida. Critical Compilation of Wavelengths and Energy Levels of Singly Ionized Beryllium (Be II). *Physica Scripta* **72**, 309 (2005).

- [183] O. Poulsen, T. Andersen, N. J. Skouboe. Fast-beam, zero-field level-crossing measurements of radiative lifetimes, fine and hyperfine structures in excited states of ionic and neutral beryllium. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **8**, 1393 (1975).
- [184] D. A. Steck. Cesium D Line Data. available online at <http://steck.us/alkalidata> (revision 2.1.4, 23 December 2010).
- [185] W. Happer. Optical Pumping. *Reviews of Modern Physics* **44**, 169 (1972).
- [186] A. C. Wilson, *et al.*. A 750 mW, continuous-wave, solid-state laser source at 313 nm for cooling and manipulating trapped  $^9\text{Be}^+$  ions. *Applied Physics B* **105**, 741 (2011).
- [187] D. Hart, L. Goldberg, W. Burns. Red light generation by sum frequency mixing of Er/Yb fibre amplifier output in QPM LiNbO<sub>3</sub>. *Electronics Letters* **35**, 52 (1999).
- [188] T. Haensch, B. Couillaud. Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity. *Optics Communications* **35**, 441 (1980).
- [189] S. Feuchtenbeiner. Lasersysteme für die Präzisionsspektroskopie sympathetisch gekuehlter hochgeladener Ionen. Masterarbeit (2015).
- [190] W. Nagourney, G. Janik, H. Dehmelt. Linewidth of Single Laser-Cooled  $^{24}\text{Mg}$  Ion in Radiofrequency Trap.. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **80**, 643–646 (1983).
- [191] V. Batteiger, *et al.*. Precision spectroscopy of the 3s-3p fine-structure doublet in  $\text{Mg}^+$ . *Physical Review A* **80** (2009).
- [192] S. Knünz, *et al.*. Sub-millikelvin spatial thermometry of a single Doppler-cooled ion in a Paul trap. *Physical Review A* **85** (2012).
- [193] A. Kellerbauer, T. Kim, R. Moore, P. Varfalvy. Buffer gas cooling of ion beams. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **469**, 276 (2001).
- [194] C. Droese, *et al.*. The cryogenic gas stopping cell of SHIPTRAP. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **338**, 126 (2014).
- [195] X. Flechard, *et al.*. Paul Trapping of Radioactive  $^6\text{He}^+$  Ions and Direct Observation of Their  $\beta$ -Decay. *Physical Review Letters* **101** (2008).
- [196] N. Scielzo, *et al.*. The Paul trap: A radiofrequency-quadrupole ion trap for precision studies. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **681**, 94 (2012).

- [197] L. Gruber, *et al.*. Evidence for Highly Charged Ion Coulomb Crystallization in Multicomponent Strongly Coupled Plasmas. *Physical Review Letters* **86**, 636 (2001).
- [198] A. Wagner, *et al.*. g-Factor of Lithiumlike Silicon  $^{28}\text{Si}^{11+}$ . *Physical Review Letters* **110** (2013).
- [199] U. Chowdhury, *et al.* (AIP Publishing, 2015).
- [200] L. Schmöger, *et al.*. Deceleration, precooling, and multi-pass stopping of highly charged ions in  $\text{Be}^+$  Coulomb crystals. *Review of Scientific Instruments* **86**, 103111 (2015).
- [201] R. Marrs. Self-cooling of highly charged ions during extraction from electron beam ion sources and traps. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **149**, 182 (1999).
- [202] M. Bussmann, U. Schramm, D. Habs, V. Kolhinen, J. Szerypo. Stopping highly charged ions in a laser-cooled one component plasma of ions. *International Journal of Mass Spectrometry* **251**, 179 (2006).
- [203] A. H. Sorensen, E. Bonderup. Electron cooling. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* **215**, 27 (1983).
- [204] B. M. Penetrante, J. N. Bardsley, D. DeWitt, M. Clark, D. Schneider. Evolution of ion-charge-state distributions in an electron-beam ion trap. *Physical Review A* **43**, 4861 (1991).
- [205] B. M. Penetrante, J. N. Bardsley, M. A. Levine, D. A. Knapp, R. E. Marrs. Evaporative cooling of highly charged dysprosium ions in an enhanced electron-beam ion trap. *Physical Review A* **43**, 4873 (1991).
- [206] L. Schmöger. Ein elektrodynamisches System für den Transfer hochgeladener Ionen in eine Paulfalle. Diplomarbeit (2013).
- [207] S. Mahmood, *et al.*. RECOMBINATION AND ELECTRON IMPACT EXCITATION RATE COEFFICIENTS FOR S XV AND S XVI. *The Astrophysical Journal* **754**, 86 (2012).
- [208] P. Mandal, G. Sikler, M. Mukherjee. Simulation study and analysis of a compact einzel lens-deflector for low energy ion beam. *Journal of Instrumentation* **6**, P02004 (2011).
- [209] H. D. Zeman. Deflection of an ion beam in the two-dimensional electrostatic quadrupole field. *Review of Scientific Instruments* **48**, 1079 (1977).
- [210] S. Coeck, *et al.*. A pulsed drift cavity to capture 30keV ion bunches at ground potential. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* **572**, 585 (2007).

- [211] A. M. Ghalambor-Dezfuli, R. B. Moore, S. Schwartz. A very large Paul trap ion gun for delivering bunched low energy ion beams. *Review of Scientific Instruments* **73**, 685 (2002).
- [212] W. B. Colson, J. McPherson, F. T. King. High-gain imaging electron multiplier. *Review of Scientific Instruments* **44**, 1694 (1973).
- [213] S. Goldberg, *et al.*. Phase-space manipulation of stored ions using the  $\delta$ -kick method. *Physical Review A* **68** (2003).
- [214] I. W. Research. Mathematica. version 10.2 ed. (Wolfram Research, Inc., Champaign, Illinois) (2015).
- [215] D. A. Dahl. SIMION for the personal computer in reflection. *International Journal of Mass Spectrometry* **200**, 3 (2000).
- [216] L. Nagel, D. Pederson. Memorandum No. ERL-M382. University of California, Berkeley (1973).
- [217] B. Piest. Injektion, Speicherung und Abbildung hochgeladener Argon-Ionen in der kryogenen Paul-Falle CryPTEx. Masterarbeit (2015).
- [218] L. Hornekaer, N. Kjaergaard, A. M. Thommesen, M. Drewsen. Structural Properties of Two-Component Coulomb Crystals in Linear Paul Traps. *Physical Review Letters* **86**, 1994 (2001).
- [219] A. Mokhberi, S. Willitsch. Sympathetic cooling of molecular ions in a surface-electrode ion trap. *Physical Review A* **90** (2014).
- [220] F. H. J. Hall, S. Willitsch. Millikelvin Reactive Collisions between Sympathetically Cooled Molecular Ions and Laser-Cooled Atoms in an Ion-Atom Hybrid Trap. *Physical Review Letters* **109** (2012).
- [221] J. Biesheuvel, *et al.*. Probing QED and fundamental constants through laser spectroscopy of vibrational transitions in  $\text{HD}^+$ . *Nature Communications* **7**, 10385 (2016).
- [222] R. Blümel, C. Kappler, W. Quint, H. Walther. Chaos and order of laser-cooled ions in a Paul trap. *Physical Review A* **40**, 808 (1989).
- [223] J. P. Schiffer. Phase transitions in anisotropically confined ionic crystals. *Physical Review Letters* **70**, 818 (1993).
- [224] D. H. E. Dubin. Equilibrium and dynamics of uniform density ellipsoidal non-neutral plasmas. *Physics of Fluids B: Plasma Physics* **5**, 295 (1993).
- [225] J. Liang, P. C. Haljan. Hopping of an impurity defect in ion crystals in linear traps. *Physical Review A* **83** (2011).
- [226] T. P. Meyrath, D. F. James. Theoretical and numerical studies of the positions of cold trapped ions. *Physics Letters A* **240**, 37 (1998).

- [227] D. Kielpinski, *et al.*. Sympathetic cooling of trapped ions for quantum logic. *Physical Review A* **61** (2000).
- [228] A. Steane. The ion trap quantum information processor. *Applied Physics B: Lasers and Optics* **64**, 623 (1997).
- [229] H. Naegerl, W. Bechter, J. Eschner, F. Schmidt-Kaler, R. Blatt. Ion strings for quantum gates. *Applied Physics B* **66**, 603 (1998).
- [230] B. Roth, P. Blythe, S. Schiller. Motional resonance coupling in cold multispecies Coulomb crystals. *Phys. Rev. A* **75**, 023402 (2007).
- [231] K. Molhave, M. Drewsen. Formation of translationally cold  $\text{MgH}^+$  and  $\text{MgD}^+$  molecules in an ion trap. *Phys. Rev. A* **62**, 011401 (2000).
- [232] B. G. Norton, E. W. Streed, M. J. Petراسiunas, A. Jechow, D. Kielpinski. Millikelvin spatial thermometry of trapped ions. *New Journal of Physics* **13**, 113022 (2011).
- [233] C. Marquet, F. Schmidt-Kaler, D. James. Phonon-phonon interactions due to non-linear effects in a linear ion trap. *Applied Physics B: Lasers and Optics* **76**, 199 (2003).
- [234] J. Steiger, *et al.*. Charge exchange between  $\text{Xe}^{44+}$  and  $\text{H}_2$  in an ion trap. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **98**, 569 (1995).
- [235] G. M. Weinberg. Measurement of charge exchange cross sections for highly charged Xenon and Thorium ions with molecular hydrogen in a Penning trap. Ph.D Thesis (1995).
- [236] A. Barany, *et al.*. Absolute cross sections for multi-electron processes in low energy  $\text{Ar}^{q+}$ -Ar collisions: Comparison with theory. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **9**, 397 (1985).
- [237] A. Niehaus. A classical model for multiple-electron capture in slow collisions of highly charged ions with atoms. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **19**, 2925 (1986).
- [238] C.-P. S. Ingolf Volker Hertel. *Atoms, Molecules and Optical Physics 2* (Springer Berlin Heidelberg, 2014).
- [239] E. McCormack, J. M. Gilligan, C. Cornaggia, E. E. Eyler. Measurement of high Rydberg states and the ionization potential of  $\text{H}_2$ . *Physical Review A* **39**, 2260 (1989).
- [240] D. Shiner, J. M. Gilligan, B. M. Cook, W. Lichten.  $\text{H}_2$ ,  $\text{D}_2$ , and  $\text{HD}$  ionization potentials by accurate calibration of several iodine lines. *Physical Review A* **47**, 4042 (1993).



- [241] P. Langevin. Une formule fondamentale de théorie cinétique. *Ann. Chim. Phys.* **5**, 245 (1905).
- [242] A. T. Grier, M. Cetina, F. Oručević, V. Vuletić. Observation of Cold Collisions between Trapped Ions and Trapped Atoms. *Physical Review Letters* **102** (2009).
- [243] D. Zhang, S. Willitsch. Cold ion chemistry. *Low Energy and Low Temperature Molecular Scattering* **arXiv:1703.07133 [physics.chem-ph]** (2017).
- [244] T. Fließbach. *Mechanik* (Springer-Verlag GmbH, 2014).
- [245] A. Härter, J. H. Denschlag. Cold atom-ion experiments in hybrid traps. *Contemporary Physics* **55**, 33 (2014).
- [246] NIST Computational Chemistry Comparison and Benchmark Database, NIST Standard Reference Database Number 101, Release 16a, August 2013, Editor: Russell D. Johnson III, <http://cccbdb.nist.gov/>.
- [247] D. Church. Collision measurements and excited-level lifetime measurements on ions stored in Paul, Penning and Kingdon ion traps. *Physics Reports* **228**, 253 (1993).
- [248] P. Zhang, A. Dalgarno, R. Côté. Scattering of Yb and Yb<sup>+</sup>. *Physical Review A* **80** (2009).
- [249] H. Thomas, *et al.*. Plasma Crystal: Coulomb Crystallization in a Dusty Plasma. *Physical Review Letters* **73**, 652 (1994).
- [250] D. Dubin, T. O’Neil. Computer simulation of ion clouds in a Penning trap. *Physical Review Letters* **60**, 511 (1988).
- [251] C. Champenois. About the dynamics and thermodynamics of trapped ions. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **42**, 154002 (2009).
- [252] L. Hornekaer, M. Drewsen. Formation process of large ion Coulomb crystals in linear Paul traps. *Physical Review A* **66** (2002).
- [253] J. Pedregosa-Gutierrez. Private Kommunikation (2017).
- [254] D. Offenberg, C. B. Zhang, C. Wellers, B. Roth, S. Schiller. Translational cooling and storage of protonated proteins in an ion trap at subkelvin temperatures. *Physical Review A* **78** (2008).
- [255] J. Pedregosa-Gutierrez, C. Champenois, M. R. Kamsap, M. Knoop. Ion transport in macroscopic RF linear traps. *International Journal of Mass Spectrometry* **381-382**, 33 (2015).

- [256] R. Blatt, P. Zoller, G. Holzmüller, I. Siemers. Brownian motion of a parametric oscillator: A model for ion confinement in radio frequency traps. *Zeitschrift für Physik D Atoms, Molecules and Clusters* **4**, 121 (1986).
- [257] V. Rajagopal, J. Marler, M. Kokish, B. Odom. Trapped ion chain thermometry and mass spectrometry through imaging. *European Journal of Mass Spectrometry* **22**, 1 (2016).
- [258] M. T. Dove. *Structure and Dynamics* (Oxford University Press, 2003).
- [259] J. D. Wong-Campos, K. G. Johnson, B. Neyenhuis, J. Mizrahi, C. Monroe. High-resolution adaptive imaging of a single atom. *Nature Photonics* **10**, 606 (2016).
- [260] K. Vahala, *et al.*. A phonon laser. *Nature Physics* **5**, 682 (2009).
- [261] A. Lapierre, *et al.*. Lifetime measurement of the Ar XIV metastable level at the Heidelberg electron-beam ion trap. *Physical Review A* **73** (2006).
- [262] T. Leopold, *et al.*. A tunable low-drift laser stabilized to an atomic reference. *Applied Physics B* **122** (2016).
- [263] C. R. Clark, J. E. Goeders, Y. K. Dodia, C. R. Viteri, K. R. Brown. Detection of single-ion spectra by Coulomb-crystal heating. *Physical Review A* **81** (2010).
- [264] D. B. Hume, *et al.*. Trapped-Ion State Detection through Coherent Motion. *Physical Review Letters* **107** (2011).
- [265] C. Hempel, *et al.*. Entanglement-enhanced detection of single-photon scattering events. *Nature Photonics* **7**, 630 (2013).
- [266] Y.-W. Lin, S. Williams, B. C. Odom. Resonant few-photon excitation of a single-ion oscillator. *Physical Review A* **87** (2013).
- [267] Y. Wan, *et al.*. Precision spectroscopy by photon-recoil signal amplification. *Nature Communications* **5** (2014).
- [268] F. Wolf, *et al.*. Non-destructive state detection for quantum logic spectroscopy of molecular ions. *Nature* **530**, 457 (2016).
- [269] D. J. Wineland, H. Dehmelt. Proposed  $10^{14} \Delta\nu/\nu$  laser fluorescence spectroscopy on  $\text{Ti}^+$  mono-ion oscillator III (sideband cooling). *Bull. Am. Phys. Soc.* **20**, 637 (1975).
- [270] M. F. Brandl, *et al.*. Cryogenic setup for trapped ion quantum computing. *Review of Scientific Instruments* **87**, 113103 (2016).
- [271] J. K. Rudolph, *et al.*. X-Ray Resonant Photoexcitation: Linewidths and Energies  $K\alpha$  Transitions in Highly Charged Fe Ions. *Physical Review Letters* **111** (2013).

- [272] C. Benko, *et al.*. Extreme ultraviolet radiation with coherence time greater than 1s. *Nature Photonics* **8**, 530 (2014).
- [273] D. Z. Kandula, C. Gohle, T. J. Pinkert, W. Ubachs, K. S. E. Eikema. XUV frequency-comb metrology on the ground state of helium. *Physical Review A* **84** (2011).
- [274] J. Morgenweg, I. Barmes, K. S. E. Eikema. Ramsey-comb spectroscopy with intense ultrashort laser pulses. *Nature Physics* **10**, 30 (2013).
- [275] R. Altmann, S. Galtier, L. Dreissen, K. Eikema. High-Precision Ramsey-Comb Spectroscopy at Deep Ultraviolet Wavelengths. *Physical Review Letters* **117** (2016).
- [276] C. Gohle, *et al.*. A frequency comb in the extreme ultraviolet. *Nature* **436**, 234 (2005).
- [277] J. Nauta, *et al.*. Towards precision measurements on highly charged ions using a high harmonic generation frequency comb. *Accepted for publication in NIMB Proceedings* (2017).
- [278] J. R. C. López-Urrutia. Frequency metrology using highly charged ions. *Journal of Physics: Conference Series* **723**, 012052 (2016).



## Erklärung

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, den 01.05.2017